



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Nukleare Sicherheitsforschung

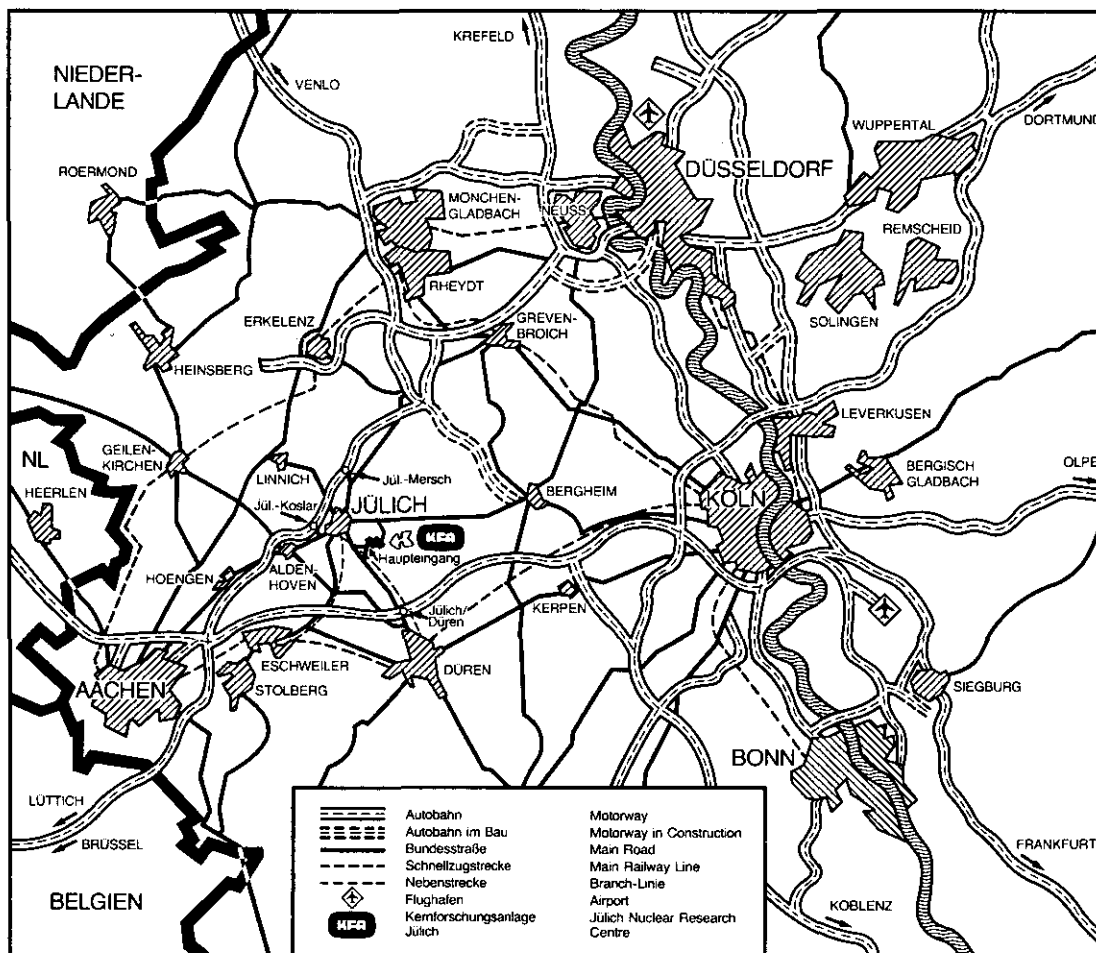
FRESCO-II:

**Ein Rechenprogramm zur Berechnung der
Spaltproduktfreisetzung aus kugelförmigen
HTR-Brennelementen in Bestrahlungs-
und Ausheizexperimenten**

von

H. Krohn und R. Finken

**Jül-Spez-212
Juni 1983
ISSN 0343-7639**



Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 212

Institut für Nukleare Sicherheitsforschung Jülich - Spez - 212

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 024 61/610 · Telex: 833 556-0 kf d

FRESCO-II: EIN RECHENPROGRAMM ZUR BERECHNUNG DER
SPALTPRODUKTFREISETZUNG AUS KUGELFÖRMIGEN HTR-BRENNELEMENTEN
IN BESTRAHLUNGS- UND AUSHEIZEXPERIMENTEN

von

H. Krohn und R. Finken

KURZFASSUNG

Das modular aufgebaute Rechenprogramm FRESCO, das zur Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus dem Reaktorkern unter Störfallbedingungen entwickelt wurde, wurde durch Austauschen einiger Programmmoduln so erweitert, daß auch Transportmechanismen (z.B. Recoil) berücksichtigt werden, die nur unter Normalbetriebsbedingungen oder bei Bestrahlungsexperimenten eine Rolle spielen.

Anschließend wurde mit dem Programm die Cäsium- und Strontiumfreisetzung aus einem HTR-Brennelement für drei Experimente berechnet. Dabei zeigte sich, daß mit den vorliegenden Modellvorstellungen die gemessene Freisetzung beschrieben werden kann.

FRESCO-II: A COMPUTER PROGRAM FOR ANALYSIS OF
FISSION PRODUCT RELEASE FROM SPHERICAL HTGR-FUEL ELEMENTS
IN IRRADIATION AND ANNEALING EXPERIMENTS

by

H. Krohn and R. Finken

ABSTRACT

The modular computer code FRESCO has been developed to describe the mechanism of fission product release from a HTGR-Core under accident conditions. By changing some program modules it has been extended to take into account the transport phenomena (i.e. recoil) too, which only occur under reactor operating conditions and during the irradiation experiments.

For this report, the release of cesium and strontium from three HTGR-fuel elements has been evaluated and compared with the experimental data. The results show that the measured release can be described by the considered models.

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. <u>Einleitung</u>	1
2. <u>Transportmodelle zur Berechnung der Spaltproduktfrei- setzung aus den Partikeln und Brennelementen</u>	3
2.1 Intakte Partikel	6
2.2 Defekte Partikel	7
2.3 Recoil-Prozeß	8
2.4 Volumendiffusion in den Graphitkörnern	10
2.5 Spaltprodukttransport in den Brennelementen	10
2.6 Anfangsbedingungen	13
2.7 Numerisches Verfahren zur Lösung der Diffusions- gleichungen	14
3. <u>Nachrechnung der Ausheizexperimente G0-3, FRJ2-K11 und R2-K12</u>	19
3.1 Kurzbeschreibung der Experimente und der Eingabedaten	19
3.2 Nachrechnung der Kugel G0-3 mit BISO-Partikeln	26
3.3 Nachrechnung der Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln	31
3.4 Nachrechnung der Kugel R2-K12 mit TRISO-Partikeln	39
4. <u>Zusammenfassung</u>	42
5. <u>Literatur</u>	44
6. <u>Anhang: Beschreibung des Rechenprogramms</u>	46
6.1 Baumdiagramme	46
6.2 Flußdiagramme	49
6.3 Eingabebeschreibung	53

1. Einleitung

Bei der Core-Auslegung eines Hochtemperaturreaktors (HTR) muß u.a. die Spaltproduktfreisetzung aus den Brennelementen in das Kühlgas berechnet werden. Dies trifft vor allem für die langlebigen radioaktiven Cäsium-, Strontium- und Silberisotope zu, da sie hauptsächlich zur Kontamination der Primärkreislaufkomponenten beitragen und damit u.U. die Wartbarkeit dieser Komponenten erheblich beeinflussen.

Auch für Störfallbetrachtungen ist die Menge der im Normalbetrieb aus den Brennelementen freigesetzten Spaltprodukte, die sich zum größten Teil an Graphitstaub oder an metallischen Primärkreisoberflächen ablagern, von Bedeutung. Bei einer Druckentlastung z.B. wird die im Kühlgas befindliche Aktivität direkt freigesetzt. Außerdem können abgelagerte Spaltprodukte durch die bei einer Druckentlastung auftretenden schnellen Gasgeschwindigkeiten mitgerissen und aus dem Primärkreis getragen werden.

Insbesondere bei Reaktoren kleiner Leistung ist die quantitative Beschreibung dieser Mechanismen wichtig, da nur diese nennenswert zur Spaltproduktfreisetzung beitragen, denn selbst bei einer ungehinderten Coreaufheizung bleiben die Brennelementtemperaturen immer unter 1600°C (s. /1/).

Zur Berechnung der Freisetzung metallischer Spaltprodukte aus HTR-Brennelementen wurde in der KFA bisher das Rechenprogramm SLIPPER /2, 3, 7/ eingesetzt. Dieses Programm wurde ursprünglich zur Nachrechnung von Bestrahlungsexperimenten entwickelt. Um dabei möglichst viele Randbedingungen erfassen zu können, erfordert das Programm eine Vielzahl von Eingabedaten, welche jedoch bei einfacheren Anwendungen nicht benötigt werden.

Andererseits stand mit dem Rechenprogramm FRESCO, das zur Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus dem Reaktorkern unter Störfallbedingungen entwickelt wurde, ein modular aufgebautes und daher leicht erweiterbares Rechenprogramm zur Verfügung. Durch einfaches Austauschen von Programmmodulen konnte daher dieses Programm so erweitert werden, daß auch die Spaltproduktfreisetzung unter Normalbetriebsbedingungen oder in Bestrahlungsexperimenten nach heutigem Kenntnisstand damit berechnet werden kann.

Da dieses Rechenprogramm (FRESCO-II) modular aufgebaut ist, können eventuelle Erweiterungen der Rechenmodelle zum Spaltprodukttransport leicht berücksichtigt werden. Außerdem kann ohne großen Aufwand eine Kopplung mit

anderen Rechenprogrammen, z.B. dem Programm PLATO /5/ zur Berechnung der Spaltproduktablagerung im weiteren Primärkreis, vorgenommen werden.

Im folgenden werden nun zunächst die dem Programm zugrundeliegenden Modellvorstellungen beschrieben und anschließend die Anwendungsmöglichkeiten aufgezeigt. Weiterhin werden im Anhang der Programmaufbau mittels Fluß- und Baumdiagrammen detailliert dargestellt und schließlich die erforderlichen Eingabedaten beschrieben.

2. Transportmodelle zur Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus den Partikeln und Brennelementen

Wichtige Kriterien eines Rechenprogramms sind die darin enthaltenen Voraussetzungen. Vor der detaillierten Beschreibung der einzelnen Rechenmodelle werden daher die wichtigsten Annahmen aufgeführt. Diese sind:

- der Spaltprodukttransport im Festkörper (Brennstoffteilchen, Graphit) kann durch Fick'sche Diffusionsgleichungen beschrieben werden,
- die Spaltproduktkonzentration im Kühlgas bleibt so gering, daß die Spaltprodukte sich im Kühlgas wie ideale Gase verhalten,
- chemische Reaktionen zwischen verschiedenen Spaltprodukt-Elementen bzw. zwischen Spaltprodukten und Kühlgasverunreinigungen (z.B. Wasser) werden nicht berücksichtigt,
- die Diffusionsgeschwindigkeit eines Nuklides hängt nur von seinen chemischen Eigenschaften ab, d.h. alle Isotope eines Elementes diffundieren gleich schnell,
- die De- bzw. Adsorption metallischer Spaltprodukte an der Grenze Festkörper - Kühlgas kann erfaßt werden durch die Annahme eines Konzentrationssprunges, dessen Höhe aus empirischen Adsorptionsisothermen gegeben ist.

Die dem vorliegenden Programm zugrunde gelegte Brennelement- und Partikelgeometrie ist in Abb. 1 skizziert. Brennelemente und Partikel werden als kugelsymmetrische Körper angesehen, und es wird vorausgesetzt, daß die Partikel in der Innenzone ($r < 2,5$ cm) der Brennelemente homogen verteilt vorliegen.

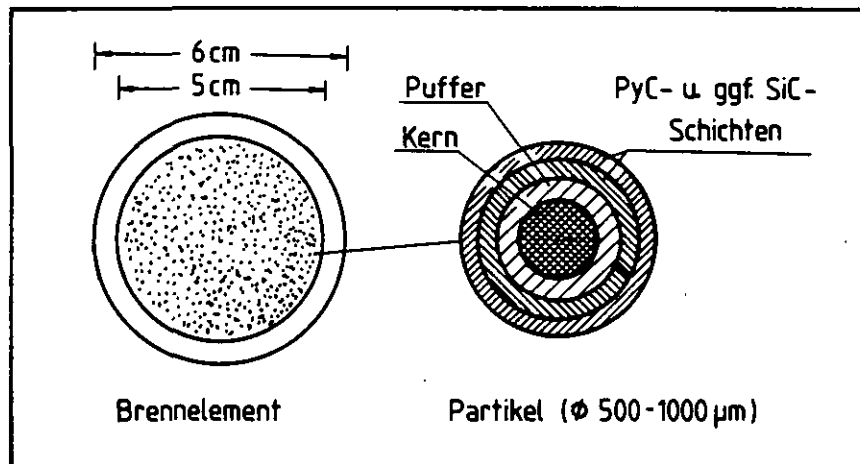


Abb. 1: Brennelement- und Partikelgeometrie

Weiterhin wurden den Rechnungen folgende Annahmen zugrunde gelegt:

- Die Temperaturunterschiede in Brennelement und Partikel sind, verglichen mit den Unsicherheiten der Diffusionskoeffizienten, so gering, daß mit hinreichender Genauigkeit innerhalb der Brennelemente und Partikel eine örtlich konstante Temperatur angenommen werden kann.
- Der Graphit ist als ein Gefüge aus kleinen, regellos angeordneten Kristalliten zu betrachten (siehe Abb. 2).
- Ein Teil der aus der Uran-Konzentration des Graphits stammenden Spaltprodukte befindet sich zum Störfallbeginn in den Graphitkörnern, der Rest an den Korngrenzen.
- Aus den Partikeln freigesetzte Spaltprodukte befinden sich unmittelbar nach ihrer Freisetzung an den Korngrenzen...
- Der Spaltprodukttransport aus den Körnern zu den Korngrenzen erfolgt über die langsame "Volumendiffusion".

- Der Transport der an den Korngrenzen vorliegenden Spaltprodukte erfolgt über die schnelle "Porendiffusion".

Die Begriffe "Porendiffusion" und "Volumendiffusion" werden in /3,6/ ausführlich erläutert.

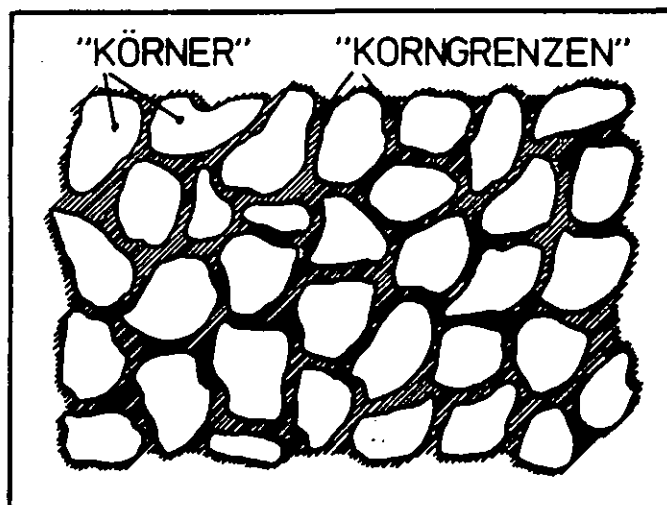


Abb. 2: Graphitkörner und Korngrenzen (schematisch)

Die Rechnung der Spaltprodukt-Diffusion in den Partikeln und im Graphit für einen Zeitschritt erfolgt jeweils in zwei aufeinanderfolgenden Schritten. Zunächst wird die Spaltprodukt-Diffusion in einem Partikel berechnet. Außerdem wird die Diffusion der Spaltprodukte in einem Graphitkorn berechnet, das dabei auch als kugelsymmetrisch angesehen wird. Daraus ergibt sich die während eines Zeitschritts aus einem Partikel und einem Graphitkorn freigesetzte Spaltproduktmenge. Durch Wichtung mit der Anzahl der Partikel und der Uran-Kontamination erhält man daraus wiederum die tatsächliche Menge der bis an die Korngrenzen transportierten Spaltprodukte. In einem zweiten Schritt wird dann die Diffusion der Spaltprodukte an den Korngrenzen und die Desorption ins Kühlgas berechnet. Die zur Beschreibung dieser Diffusionsvorgänge verwendeten Gleichungen werden im folgenden aufgeführt.

2.1 Intakte Partikel

Der Spaltprodukttransport in den Partikeln wird durch die Fick'sche Diffusionsgleichung beschrieben.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D(T) \cdot \left(\frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \cdot \frac{\partial c}{\partial r} \right) - \lambda c + \dot{Q} \quad (2-1)$$

c [Atome/cm ³]	SP-Konzentration
t [sec]	Zeitkoordinate
r [cm]	Ortskoordinate
D [cm ² /sec]	Diffusionskoeffizient
T [K]	Temperatur
λ [1/sec]	Zerfallskonstante
Q̇ [Atome/(cm ³ sec)]	Entstehungsrate der Spaltprodukte

Zur Berücksichtigung unterschiedlicher Diffusionskoeffizienten in den Beschichtungen (siehe Abb. 1) kann das Partikel in maximal fünf Zonen unterteilt werden. In jeder Zone wird ein örtlich konstanter Diffusionskoeffizient vorausgesetzt, der ebenso wie in /2,3,6/ über eine Arrheniusbeziehung aus der Temperatur berechnet wird.

$$D_{\text{Zone}}(T) = D_{0\text{Zone}} \cdot \exp\left(\frac{-A_{\text{Zone}}}{RT}\right) \quad (2-2)$$

Der sogenannte Frequenzfaktor $D_{0\text{Zone}}$ [cm²/sec] und die Aktivierungsenergie A_{Zone} [J/mol] müssen ebenso wie die Radien für jede Partikelzone vorgegeben werden. R steht für die universelle Gaskonstante (R = 8,3143 J/K mol). Andere empirische Beziehungen, z.B. bei konzentrationsabhängigen Diffusionskoeffizienten, lassen sich durch einfache Programmänderungen erfassen.

Als Randbedingung an der Partikeloberfläche ($r = r_p$) wird angenommen, daß die Konzentration dort gleich der mittleren Konzentration \bar{c}_{gr} im Matrix-graphit der Brennelementkugeln ist.

$$c(r = r_p) = \bar{c}_{gr} \quad (2-3)$$

Außerdem gilt aus Symmetriegründen im Partikelzentrum:

$$\frac{\partial c}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0 \quad (2-4)$$

2.2 Defekte Partikel

Zur Berechnung des Anteils an Defektpartikeln in einem Brennelement muß eine empirische Funktion vorgegeben werden, die das Partikelversagen in Abhängigkeit von der Temperatur und vom Abbrand beschreibt. Diese Funktion muß durch eine Treppenfunktion dargestellt und in dem austauschbaren Unterprogramm PBRUCH programmiert werden.

Für jeden Zeitschritt wird daraus der Partikelanteil bestimmt, der während des Zeitschrittes defekt wird. Die dann bereits aus dem Partikelkern in den Puffer und in die Beschichtung diffundierten Spaltprodukte werden so behandelt, als ob sie spontan aus den Partikeln freigesetzt werden.

Die Freisetzung der noch im Partikelkern befindlichen Spaltprodukte wird ebenso wie die Spaltprodukt-Freisetzung aus intakten Partikeln mittels der Fick'schen Diffusionsgleichung (2-1) berechnet. Dabei wird vorausgesetzt, daß nach dem Versagen der Kern ohne jegliche Beschichtung im Brennelement vorliegt und der gleiche Diffusionskoeffizient wie im Kern der intakten Partikel verwendet werden kann.

2.3 Recoil-Prozeß

Neben dem Diffusionsmechanismus kann unter Normalbetriebsbedingungen noch der sogenannte Recoil in nennenswertem Umfang zur Spaltproduktfreisetzung beitragen. Mit Recoil wird der Vorgang bezeichnet, daß nach einer Kernspaltung die entstehenden Spaltprodukte infolge ihrer hohen kinetischen Energie eine kurze Strecke (Recoil-Reichweite einige μm) im umgebenden Festkörper zurücklegen bis sie vollständig abgebremst sind. Dadurch können die Spaltprodukte, die unmittelbar an der Oberfläche des Partikelkerns entstehen, direkt aus dem Kern freigesetzt werden. Weiterhin können durch diese Effekte Spaltprodukte, die infolge der Uran-Kontamination der Partikelbeschichtung und auch des Brennelementgraphits unmittelbar an der Partikel- bzw. Brennelementoberfläche entstehen, direkt aus den Partikeln bzw. aus den Brennelementen freigesetzt werden.

Der Beitrag des Recoils zur Spaltproduktfreisetzung ist unabhängig von der Temperatur und der Zerfallskonstanten und kann durch einfache Geometrieüberlegungen hergeleitet werden (s.a./6/).

Die Wahrscheinlichkeit w für die Freisetzung eines Spaltproduktes, das in der äußeren Kugelzone mit der Schichtdicke der Recoil-Reichweite R [cm] entsteht, ergibt sich zu (s. Abb. 3)

$$w(r) = \frac{1}{2} - \frac{R_0^2 - R^2 - r^2}{4 R r} \quad (2-6)$$

Die durch den Recoil bedingte Freisetzung f_{rec} [Atome/sec] erhält man dann durch Integration der Austrittswahrscheinlichkeit über das Recoilgebiet, wobei eine örtlich konstante Entstehungsrate \dot{Q} [Atome/ cm^3sec] unterstellt wird.

$$f_{\text{rec}} = \dot{Q} \cdot \pi \cdot (R R_0^2 - 1/12 \cdot R^3) \quad (2-7)$$

Bei intakten Partikeln wird diese Recoilfreisetzung aus dem Partikelkern durch eine zusätzliche homogene Quelle in der Pufferschicht berücksichtigt.

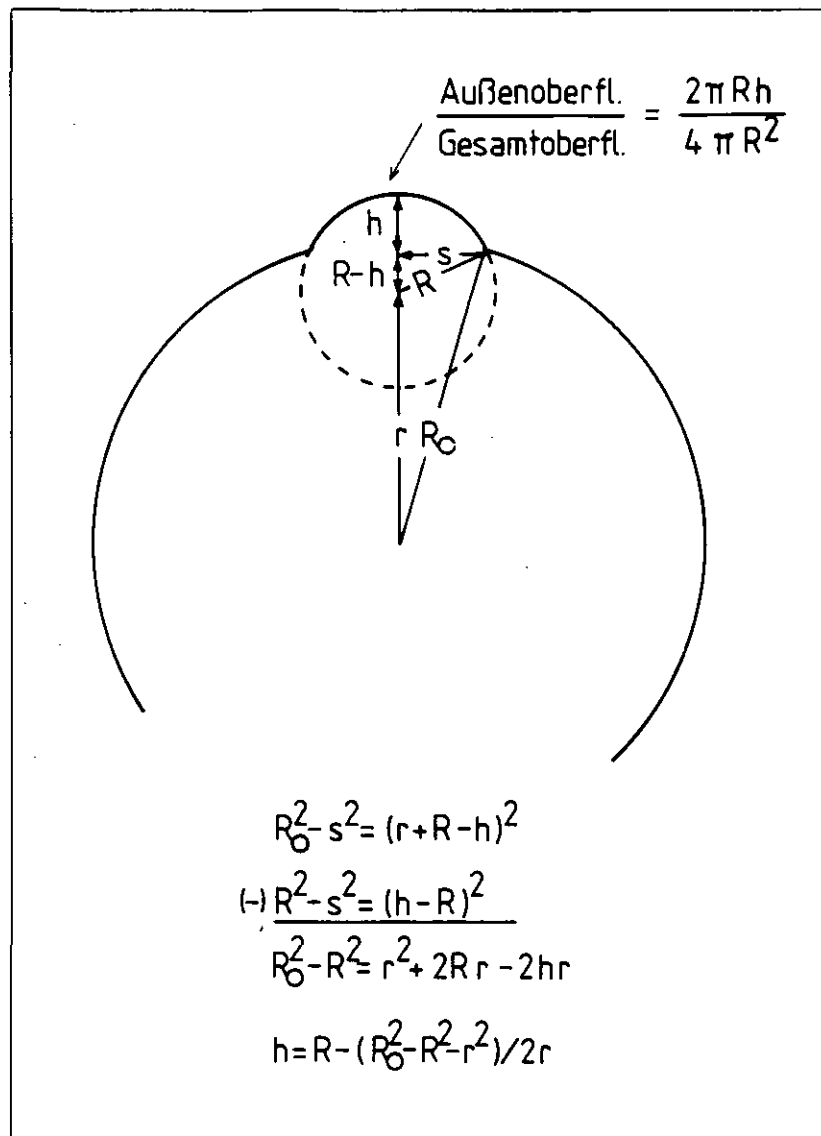


Abb. 3: Geometrie zur Recoilfreisetzung aus einer Kugel

Die Annahme einer homogenen Quelle in der Pufferschicht ist ausreichend, da die Diffusion in der Pufferschicht ohnehin, verglichen mit anderen Schichten, so schnell verläuft, daß man in der Pufferschicht immer ein örtlich konstantes Profil unterstellen kann.

Die Recoilfreisetzung aus defekten Partikeln und aus den äußeren Partikelschichten bei intakten Partikeln geht genauso wie die diffusionsbedingte Freisetzung aus den Partikeln direkt in den Quellterm für den Brennelementgraphit ein.

Die Recoilfreisetzung von den Brennelementen schließlich wird direkt der Brennelementfreisetzung hinzugerechnet.

Die Verminderung der Quellstärke in der Recoilzone wird in allen Fällen durch die Gleichung

$$\dot{Q}_{\text{ReZ}} = \dot{Q} - f_{\text{rec}}/V_{\text{ReZ}} \quad (2-8)$$

berücksichtigt, wobei V_{ReZ} das Volumen der Recoilzone bezeichnet.

2.4 Volumendiffusion in den Graphitkörnern

Die Graphitkörner werden als homogene Kugeln angesehen, und die Diffusion der Spaltprodukte darin wird ebenso wie bei den Brennelementen durch die Fick'sche Diffusionsgleichung (2-1) beschrieben. Der Diffusionskoeffizient wird als örtlich konstant vorausgesetzt und ebenso wie für die Partikel über eine Arrheniusbeziehung aus der Temperatur berechnet.

Die Randbedingungen sind die gleichen wie bei den Partikeln.

2.5 Spaltprodukttransport in den Brennelementen

Auch der Spaltprodukttransport durch Porendiffusion an den Korngrenzen des Brennelementgraphits wird durch die Fick'sche Diffusionsgleichung beschrieben:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D(T) \cdot \left(\frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \cdot \frac{\partial c}{\partial r} \right) + \dot{Q} - \lambda c \quad (2-9)$$

In der partikelhaltigen Brennelementzone werden die aus den Partikeln und den Graphitkörnern freigesetzten Spaltprodukte als homogen verteilt angenommen. Das ergibt für den Quellterm:

$$\dot{Q} = \frac{1}{V_{\text{BE-CP}}} \cdot R_{\text{partikel}} \quad (2-10)$$

Dabei bedeutet $V_{\text{BE-CP}}$ [cm³] das Volumen der partikelhaltigen Zone und R_{partikel} [Atome/sec] die Summe der Freisetzungsraten aus den Partikeln und Graphitkörnern. In der partikelfreien äußeren Zone wird in gleicher Weise die Freisetzung aus den Graphitkörnern berücksichtigt.

Der Diffusionskoeffizient $D(T)$ wird aus einer Arrheniusbeziehung berechnet, wobei für beide Zonen der gleiche Frequenzfaktor D_0 [cm²/sec] und die gleiche Aktivierungsenergie A [J/mol] angenommen werden.

$$D(T) = D_0 \cdot \exp(-A/RT) \quad (2-11)$$

Bei den Randbedingungen an der BE-Oberfläche ($r = r_{\text{BE}}$) muß bei metallischen Spaltprodukten zusätzlich die Verdampfung berücksichtigt werden. Dazu wird angenommen, daß der Partialdruck p [bar] eines Spaltproduktelementes unmittelbar an der Brennelementoberfläche durch eine Adsorptionsisotherme der Form

$$\ln p = (A + B/T) + (E + F/T) \cdot \ln c_w \quad (2-12)$$

gegeben ist. A , B , E und F sind empirische Konstanten, die vom jeweiligen Spaltproduktelement abhängig sind.

Weiter wird vorausgesetzt, daß die Spaltprodukte sich außerhalb der Brennelemente wie ideale Gase verhalten und somit der Partialdruck p [bar] gegeben ist durch

$$p = 10^3 \cdot k \cdot T \cdot c_g \quad (2-13)$$

wobei mit k [J/K] die Boltzmannsche Konstante, mit T [K] die Temperatur und mit c_g [Atome/cm³] die Konzentration in der Grenzschicht bezeichnet wird.

Damit läßt sich das Verhältnis α zwischen Grenzschicht und Wandkonzentration berechnen

$$\alpha = \frac{c_g}{c_w} = \frac{1}{T} \exp(\tilde{A} + B/T) \cdot c_w^{(\tilde{E} + F/T)} \quad (2-14)$$

mit

$$\tilde{A} = A - \ln(10k) \text{ und } \tilde{E} = E - 1$$

Der Stofftransport aus der Grenzschicht in das umgebende Kühlgas wird durch die Gleichung

$$j = \beta(c_g - c_{oo}) \quad (2-15)$$

beschrieben. Mit Gleichung (2-14) erhält man daraus dann die Randbedingung für metallische Spaltprodukte zur Lösung der Diffusionsgleichung (2-1).

$$D \frac{\partial c}{\partial r} \Big|_{r=r_{BE}} = \beta(\alpha c_w - c_{oo}) \quad (2-16)$$

Ist $(\tilde{E} + F/T) \neq 0$, d. h. die Randbedingung ist nicht linear, wird α mit der Wandkonzentration aus dem vorherigen Zeitschritt berechnet. Dabei muß beachtet werden, daß in die Adsorptionsisotherme (Gl. (2-12)) die Konzentration des chemischen Elementes eingeht und diese daher auf der rechten Seite der Gl. (2-13) eingesetzt werden muß. Dies tritt allerdings unter Normalbetriebsbedingungen praktisch nicht auf, da die Freisetzung aus den Partikeln immer derart gering ist, daß die Konzentration im Graphit immer im Henry-Bereich bleibt. Der durch diese Randbedingung vorgegebene Konzentrationsverlauf an der Grenze Helium - Graphit ist in Abb. 4 schematisch dargestellt.

Im Zentrum der Brennelemente gilt aus Symmetriegründen die Randbedingung

$$\frac{\partial c}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0 \quad (2-17)$$

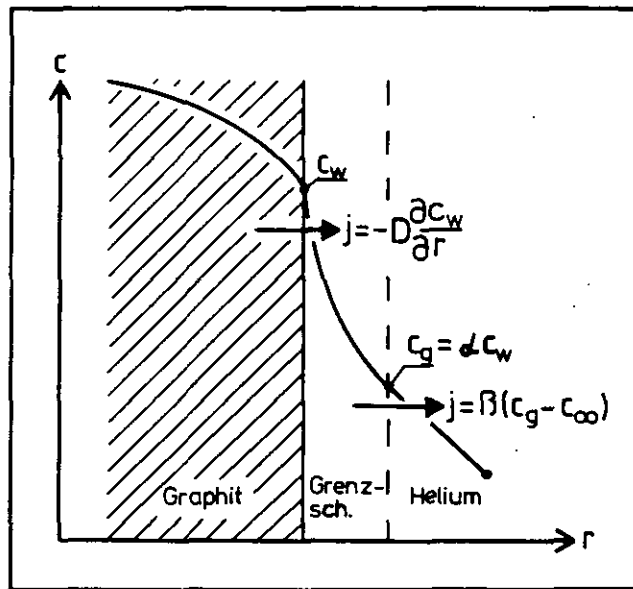


Abb. 4: Konzentrationsverlauf an der Grenze Graphit-Kühlgas für metallische Spaltprodukte (schematisch)

2.6 Anfangsbedingungen

Zur Lösung der vorher beschriebenen Diffusionsgleichungen müssen die Konzentrationsprofile in den Partikeln und im Brennelementgraphit zum Zeitpunkt $t=0$ vorgegeben werden. Bei der Nachrechnung von Bestrahlungsexperimenten ist das unproblematisch, da dann zum Zeitpunkt $t=0$ die Spaltproduktkonzentration überall gleich Null ist.

Bei der Nachrechnung von Ausheizexperimenten dagegen muß neben der reinen Ausheizzeit auch der Konzentrationsaufbau während der Bestrahlungsvorgeschichte mit berechnet werden. Das erfordert somit einen wesentlich höheren Rechenaufwand als die alleinige Nachrechnung der reinen Ausheizung und ist nicht immer möglich, da die Randbedingungen der vorhergehenden Bestrahlungszeit nicht immer hinreichend genau bekannt sind.

In dem hier beschriebenen Rechenprogramm sind daher neben der vollen Berücksichtigung der Bestrahlungsvorgeschichte noch zwei weitere Möglichkeiten zur Festlegung der Anfangsprofile vorgesehen.

- Die Diffusionsgleichungen werden für den stationären Zustand gelöst und anschließend die daraus gewonnenen Konzentrationsprofile so normiert,

daß das Volumenintegral gleich dem tatsächlichen Spaltproduktinventar ist. Dies ist äußerst konservativ, denn hierbei wird unterstellt, daß die Diffusionsfront schon voll durch die Partikelbeschichtungen durchgebrochen ist. Das ist aber selbst nach mehrjähriger Betriebszeit nicht der Fall, wie die Überschlagsformel

$$t_D = \frac{d_B^2}{6 D} \quad (2-18)$$

t_D [sec] Durchbruchzeit

d_B [cm] Dicke der Partikelbeschichtung

D [cm²/sec] Diffusionskoeffizient in der Beschichtung

zeigt.

- Zunächst wird die maximale Eindringtiefe in die Beschichtung während der Bestrahlung anhand der obigen Gleichung berechnet. Bei mehreren Beschichtungen (z. B. LTI u. SiC bei TRISO-Partikeln) wird zunächst die Durchbruchzeit durch die innere Schicht berechnet. Wenn diese größer als die Schichtdicke ist, wird dann die Eindringtiefe in die darauffolgende Schicht mit einer entsprechend verkürzten Diffusionszeit berechnet. Anschließend werden innerhalb des dadurch gegebenen Partikelbereichs die stationären Diffusionsgleichungen gelöst und die so gewonnenen Profile entsprechend dem tatsächlichen Spaltproduktinventar normiert. Außerhalb dieses Bereichs wird ein konstantes Profil angenommen, dessen Höhe entsprechend der Urkontamination festgelegt wird.

Die Auswirkungen der verschiedenen Anfangsprofile auf die berechnete Spaltproduktfreisetzung werden anhand eines Beispiels in Kapitel 3.3 diskutiert.

2.7 Numerisches Verfahren zur Lösung der Diffusionsgleichungen

Das numerische Verfahren zur Lösung der Diffusionsgleichungen ist voll implizit und bleibt somit auch bei großen Zeitschritten stabil. Außerdem ist das Verfahren so angelegt, daß die Bilanzgleichungen stets mit Rechnergenauigkeit erfüllt werden.

Im folgenden wird die Funktionsweise des Verfahrens am Beispiel der allgemeinen Diffusionsgleichung für eine rotationssymmetrische Kugel erläutert:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D(r, t) \cdot \left[\frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c}{\partial r} \right] + \dot{Q} - \lambda c \quad (2-19)$$

Die Kugel wird in N schalenförmige Volumenelemente unterteilt (s. Abb.5). In jedem dieser Volumenelemente werden der Diffusionskoeffizient D und der Quellterm Q als konstant angenommen.

Der Konzentrationsverlauf im zentralen Volumenelement ($i=N$) wird durch eine Parabel

$$c = c_N - 2 \frac{c_{N+1} - c_N}{r_N} (r - r_N) - \frac{c_{N+1} - c_N}{r_N^2} (r - r_N)^2 \quad (2-20)$$

und in den anderen Volumenelementen durch eine Gerade

$$c = c_i + \frac{c_{i+1} - c_i}{r_{i+1} - r_i} (r - r_i) \quad (2-21)$$

angenähert. Dieser Verlauf ist in der Abb. 6 dargestellt.

Die Bilanzgleichung für ein Volumenelement ergibt:

$$\frac{d}{dt} \int_{V_i} c dV = \dot{Q} V_i - \lambda \int_{V_i} c dV - j_i F_i + j_{i+1} F_{i+1} \quad (2-22)$$

Die Spaltproduktströme j_i werden nun entsprechend den Ableitungen der Gleichungen (2-20) bzw. (2-21) durch

$$j_N = - 2 D_N \frac{c_{N+1} - c_N}{-r_N} \quad (2-23a)$$

$$j_i = - D_i \cdot \frac{c_{i+1} - c_i}{r_{i+1} - r_i} \quad (2-23b)$$

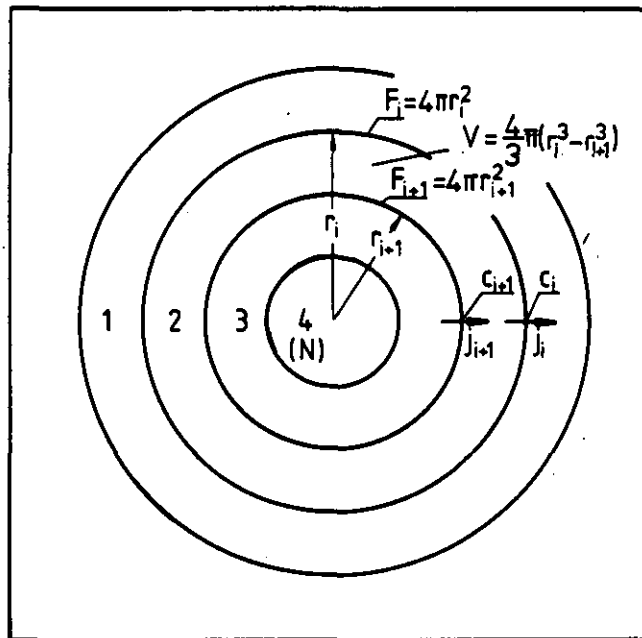


Abb. 5: Diskretisierungsvolumina zur numerischen Lösung der Diffusionsgleichung

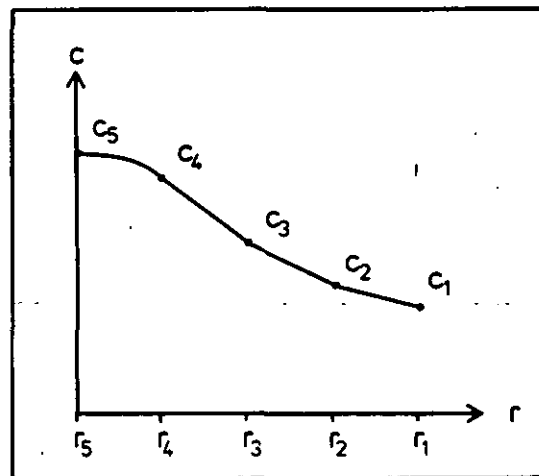


Abb. 6: Konzentrationsprofil in einer Kugel (schematisch)

und die zeitliche Ableitung durch

$$\frac{d}{dt} \int_{V_i} c dV = \frac{1}{\Delta t} \left[\int_{V_i} c^{k+1} dV - \int_{V_i} c^k dV \right] \quad (2-24)$$

approximiert. Dabei bedeutet der obere Index k bzw. k+1 vor bzw. nach dem Zeitschritt.

Mit den Gleichungen 2-20, 2-21, 2-23 und 2-24 erhält man aus der Gleichung 2-22 ein tridiagonales Gleichungssystem

$$a_{i+1} c_i^{k+1} + b_{i+1} c_{i+1}^{k+1} + d_{i+1} c_{i+2}^{k+1} = e_{i+1} \quad (2-25)$$

$$(i = 1, 2, 3 \dots, N - 1)$$

mit

$$a_{i+1} = \gamma_i (1 + \lambda \Delta t) + D_i \frac{F_i}{V_i} \frac{\Delta t}{r_{i+1} - r_i}$$

$$b_{i+1} = (1 - \gamma_i) \cdot (1 + \lambda \Delta t) - D_i \frac{F_i}{V_i} \frac{\Delta t}{r_{i+1} - r_i} -$$

$$- D_{i+1} \frac{F_{i+1}}{V_i} \frac{\Delta t}{r_{i+2} - r_{i+1}} \quad (2-26)$$

$$d_{i+1} = D_{i+1} \frac{F_{i+1}}{V_i} \frac{\Delta t}{r_{i+2} - r_{i+1}}$$

$$e_{i+1} = \gamma_i c_i^k + (1 - \gamma_i) c_{i+1}^k + \dot{Q}_i \Delta t$$

$$\gamma_i = 1 - \frac{3}{r_{i+1}^3 - r_i^3} \cdot \frac{1}{r_{i+1} - r_i} \left[\frac{r_{i+1}^4 - r_i^4}{4} - \frac{r_{i+1}^3 r_i - r_i^4}{3} \right]$$

und für $i=N$

$$\begin{aligned}
 a_{N+1} &= \gamma_N (1 + \lambda \Delta t) + D_N \frac{F_N}{V_N} \cdot \frac{2 \Delta t}{-r_N} \\
 b_{N+1} &= (1 - \gamma_N) (1 + \lambda \Delta t) - D_N \frac{F_N}{V_N} \frac{2 \Delta t}{-r_N} \\
 d_{N+1} &= 0 \\
 e_{N+1} &= \gamma_N c_N^k + (1 - \gamma_N) c_{N+1}^k + \dot{Q}_N \Delta t \\
 \gamma_N &= 0.6
 \end{aligned} \tag{2-27}$$

Das ergibt N Gleichungen für die $N+1$ Unbekannten c_i^{k+1} ($i=1, 2, \dots, N+1$). Die fehlende Gleichung erhält man aus der Randbedingung an der Kugeloberfläche (s. a. Gl. 2-16).

$$- D \frac{\partial c}{\partial r} = \beta (c - c_{oo}) \tag{2-28}$$

Diese wird numerisch dargestellt durch:

$$- D_1 \cdot \frac{c_2 - c_1}{r_2 - r_1} = \beta \cdot (c_1 - c_{oo}) \tag{2-29}$$

Die Lösung des Gleichungssystem erfolgt durch das Gauß'sche Eliminationsverfahren für tridiagonale Matrizen, das z. B. in /8/ beschrieben ist.

3. Nachrechnung der Ausheizexperimente G0-3, FRJ2-K11 und R2-K12

Die Zielsetzung von Ausheizexperimenten besteht vor allem darin, die bei Störfällen zu erwartende Spaltproduktfreisetzung aus HTR-Brennelementen experimentell zu bestimmen und theoretische Modellvorstellungen hinsichtlich des Spaltprodukttransports abzusichern. Im folgenden soll nun die Gültigkeit der vorher beschriebenen Rechenmodelle anhand der Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus den Kugeln G0-3, FRJ2-K11 (Kugel 19, Pos. 3) und R2-K12 (Kugel 3, Pos. 4) und deren Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen aufgezeigt werden.

Ein weiterer Grund für die Nachrechnung dieser Experimente ist, daß die Kugeln G0-3 und FRJ2-K12 nach der Ausheizung gründlich nachuntersucht wurden (s. /9, 10/) und somit eine Reihe experimenteller Daten vorlag.

3.1 Kurzbeschreibung der Experimente und der Eingabedaten

Die Daten der Kugeln G0-3, FRJ2-K12/03 und R2-K12/4 sind in der Tab. I aufgelistet. Diese Kugeln wurden nach der Bestrahlungszeit von Schenk /11/ bei Temperaturen zwischen 1600°C und 2000°C ausgeheizt. Dabei wurde fortwährend die Kr85-Freisetzung gemessen, um Partikeldefektquoten bei Störfalltemperaturen zu bestimmen. Weiterhin wurde am Ende jeder Heizperiode die bis dahin freigesetzte Cs137- und Cs134-Menge gemessen. Eine detaillierte Beschreibung der Experimente findet man in /11/.

Weiterhin wurden die Kugeln G0-3 und FRJ2-K11/03 nach der Ausheizung detailliert untersucht (s. /9, 10/), wobei u.a. das Inventar der Spaltprodukte Sr90 und Cs137 in den einzelnen Partikelschichten gemessen wurde. Mit diesen experimentellen Ergebnissen werden im folgenden die Rechnungen verglichen, wobei vor allem die Ergebnisse zum Spaltprodukt Cs137 diskutiert werden.

Neben den Eingabedaten, die durch die in der Tab. I aufgeführten Randbedingungen festgelegt sind, müssen für die Rechnungen noch die Adsorptionsisothermen, die Stoffübergangszahl an der Brennelementoberfläche, die Partikeldefektquoten und die Diffusionskoeffizienten spezifiziert werden. Außerdem müssen der Temperaturverlauf bei der Ausheizung und die Anfangsbedingungen festgelegt werden.

Tab. I: Daten der ausgeheizten Brennelemente

Bezeichnung	AVR-GO-3	FRJ2-K11 (Kugel 19, Pos.3)	R2-K12 (Kugel 3, Pos.4)	
<u>Partikel:</u>	HTI-BISO	LTI-TRISO	LTI-TRISO	
Kernzusammen- setzung	(U,Th) O_2	(U,Th) O_2	UC $_2$	ThO $_2$
Urananreicherung (%)	93	92,46	89,7	
Kerndurchmesser (μm)	400	500	200	500
Puffer (μm)	77	90	94	80
i PyC (μm)	108	43	34	43
SiC (μm)	-	34	38	36
o PyC (μm)	-	41	37	41
<u>Brennelement:</u>				
Graphitsorte	A3-3	A3-27	A3-27	
Anzahl Partikel im BE	20 800	10 200	25 000	9 100
U235 (g/BE)	1	1	0,99	-
Th (g/BE)	4,96	4,9	-	4,99
Kontamination (U_{frei}/U_{ges})	10^{-4}	$10^{-4} +$)	$10^{-4} +$)	
<u>Bestrahlung:</u>				
Abbrand (% fima)	$14,5 \pm 1,5$	9	10,3	
Vollasttage (d)	800	260,2	306	
schnelle Fluenz (10^{21} cm^{-2}) für $E > 0,1 \text{ MEV}$	2,8	0,1	4,7	
max. BE-Leistung (kW)	1,8	2,4	4	
max. Brennstoff- temperatur ($^{\circ}C$)	1300	1050 *)	1200	

+) In der Rechnung wurde der gleiche Wert wie bei Kugel GO-3 angenommen;
Meßwerte liegen deutlich unterhalb 10^{-4}

*) max. BE-Oberflächentemperatur

Die Adsorptionsisothermen und die Stoffübergangszahl sind bei den hier betrachteten Experimenten ohne große Bedeutung, da der Abtransport der Spaltprodukte von den Brennelementoberflächen wesentlich schneller als die Diffusion aus den Brennelementen heraus erfolgt. Daher wurde in allen Fällen die Kühlgasaktivität gleich Null gesetzt und für die Stoffübergangszahl der verhältnismäßig große Wert $\beta = 50 \text{ cm/sec}$ eingesetzt. Für die Adsorptionsisothermen wurden stets die in /12/ empfohlenen Werte eingesetzt:

$$\ln p = \ln p_0 - Q/RT + \ln c \quad (3-1)$$

p in Pa, c in $\text{mMol/kg}_{\text{Graphit}}$, p_0 in $\text{Pa}/(\text{mMol/kg})$, Q in kJ/Mol

mit

$$p_0 = 8,1 \cdot 10^4 \quad \text{u.} \quad Q = 196 \text{ für Cäsium}$$

$$p_0 = 1,9 \cdot 10^{10} \quad \text{u.} \quad Q = 452 \text{ für Strontium}$$

Für den Anteil an defekten Partikeln wurden jeweils die in Tab. III aufgeführten Werte eingesetzt, die aus /12/ entnommen wurden. Beachtenswert ist, daß der Anteil an Defektpartikeln um Größenordnungen unter der gemessenen Cäsiumfreisetzung liegt und somit keinen entscheidenden Einfluß auf die Cäsiumfreisetzung haben kann.

Die Diffusionskoeffizienten schließlich haben in den betrachteten Fällen den entscheidenden Einfluß auf die berechnete Spaltproduktfreisetzung. Zunächst wurden die Rechnungen mit dem in /12/ empfohlenen Standarddatensatz, der in Tab. II aufgelistet ist, durchgeführt. In weiteren Rechnungen wurden dann die Diffusionskoeffizienten variiert. Die dabei verwendeten Daten sind jeweils vor der Darstellung der Ergebnisse aufgeführt.

Die Temperaturverläufe bei der Aufheizung der Brennelemente sind nach den Angaben in /11/ (s. auch Tab. III) zusammengestellt und in den Abb. 7 - 9 dargestellt.

Die Anfangsbedingungen, d.h. die Konzentrationsprofile in den Partikeln und im Graphit, wurden aus vorhergehenden Diffusionsrechnungen gewonnen. Dabei wurde jeweils eine konstante Temperatur von 1050°C und eine gleichmäßige Abbrandänderung über die in Tab. I angegebenen Vollasttage unterstellt. Die Entstehungsrate der Spaltprodukte wurde dann anhand der Formel

$$\dot{Q} = \frac{dN}{dt} = \frac{d_{FIMA}}{dt} * SM * y - \lambda N \quad (3-2)$$

berechnet mit

\dot{Q}	[Atome/sec]	SP-Entstehungsrate für das gesamte Brennelement
SM	[Atome]	Anzahl der Schwermetallatome bei Bestrahlungsbeginn
y		Spaltproduktausbeute pro Spaltung (Yield)
λ	[1/sec]	Zerfallskonstante
N	[Atome]	Anzahl der Spaltproduktatome/BE zur Zeit t
FIMA		Anzahl Spaltungen nach t/BE dividiert durch Anzahl Schwermetallatome/BE

$$\frac{d_{FIMA}}{dt} * SM \quad \begin{matrix} \text{[Spaltungen} \\ \text{pro sec]} \end{matrix} \quad \text{Spaltrate}$$

Tab. II: Empfohlene Diffusionskoeffizienten für die Spaltprodukte Cäsium und Strontium (HBK-Standarddatensatz 1981, s. /12/)

Material	Cäsium		Strontium	
	D_0 [m ² /sec]	A [kJ/mol]	D_0 [m ² /sec]	A [kJ/mol]
*Kern (Th,U)O ₂			8,4 E-5	417
bei Bestrahlung	4,5 E-12	117		
bei Glühung	3,0 E-6	300		
LTI	6,3 E-8	222	2,3 E-6	197
HTI	1,8 E-01	493	2,3 E-6	197
SiC	1,8 E-11	176	1,0 E-15	43
Graphit	2,0 E-4	181	9,1 E-3	301

* Frequenzfaktor = $D_0 \times (\text{Kerndurchmesser}/500 \text{ } \mu\text{m})^2$

Tab. III: Temperaturverlauf, gemessene Cäsiumfreisetzung und Partikelbruch
bei der Ausheizung bestrahlter Brennelemente
(Daten aus /11/ u. /12/)

Kugel-Nr.	Heizprogramm			gemessene Cs-Freisetzung		Partikelbruch
	T (°C)	Aufh. (h)	Dauer (h)	Cs134 (%)	Cs137 (%)	
G0-3	300 1000 2000	0,5 0,5 3,5	5 16 5	75	74	$2 \cdot 10^{-2}$
FRJ2-K11/03	300	0,5	5			
	1000	2	13			
	1400	4	100	1	1	$< 2 \cdot 10^{-5}$
	300	0,5	4			
	1000	2	14			
	1500	4	100	1	1	$< 1 \cdot 10^{-5}$
	300	0,5	17			
	1600	6	50	1	1	$8 \cdot 10^{-5}$
	300	0,5	5			
	1000	2	16			
	1600	4	50	5	4,5	$1,5 \cdot 10^{-4}$
	300	0,5	5			
R2-K12/4	1000	2	1	16		
	1600	4	38	13	14,5	$7 \cdot 10^{-4}$
	300	0,5	16			
	1050	1,5	5			
	1250	0,5	15			
	1600	1,5	48		< 1	$< 4 \cdot 10^{-5}$
	300	0,5	16			
	1050	1,5	5			
	1250	0,5	16			
	1600	1,5	50		3,6	
	1600		48			$1,1 \cdot 10^{-4}$
	300	0,5	16			
	1700	4	22		7,3	$1,5 \cdot 10^{-4}$

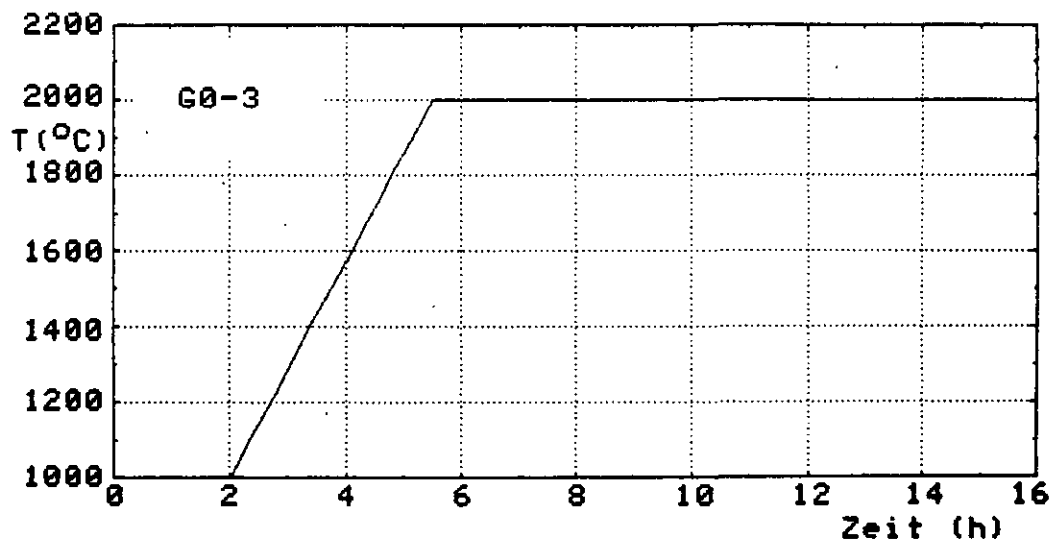


Abb. 7: Temperaturverlauf bei Ausheizung der Kugel G0-3
(nach Angabe aus /11/, s.a. Tab. III)

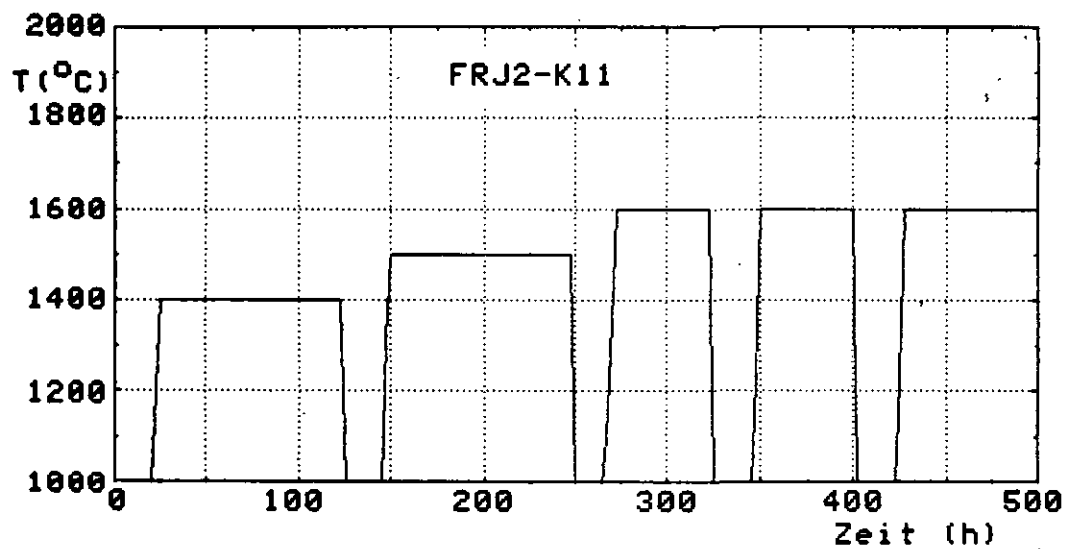


Abb. 8: Temperaturverlauf bei Ausheizung der Kugel FRJ2-K11
(nach Angabe aus /11/, s.a. Tab. III)

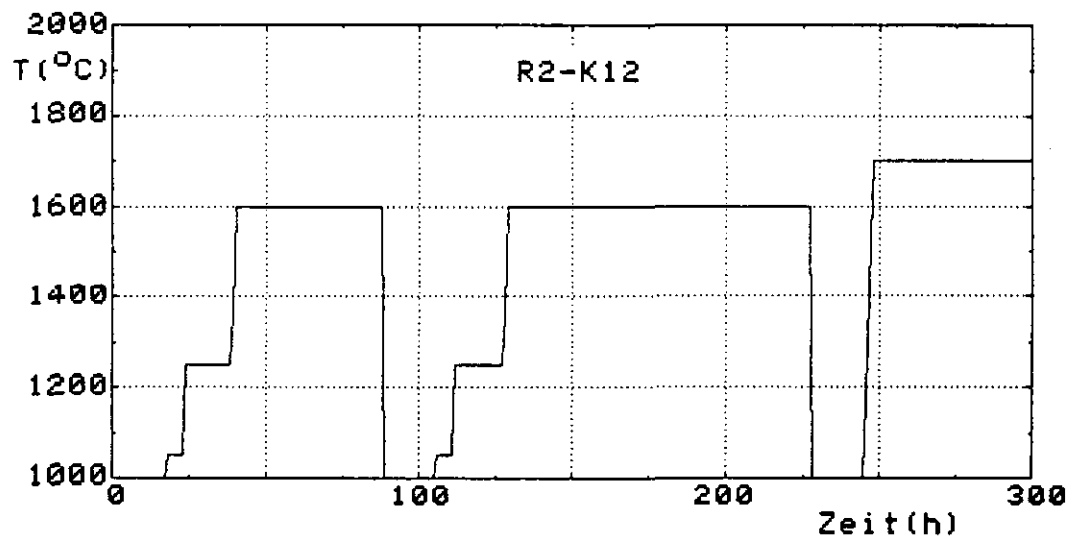


Abb. 9: Temperaturverlauf bei Ausheizung der Kugel R2-K12
(nach Angabe aus /11/, s.a. Tab. III)

3.2 Nachrechnung der Kugel GO-3 mit BISO-Partikeln

Der für die 2000°C Glühung mit den Standarddiffusionskoeffizienten (s. Tab. II) berechnete Fractional-Release für Cäsium aus dem Partikelkern, aus den Partikeln und aus dem Brennelement ist in der Abb. 10 aufgetragen. Die vor der Ausheizung höhere Freisetzung aus den Brennelementen verglichen mit der Partikelfreisetzung wird durch die hohe Urkontamination von $10^{-4} U_{\text{kont}}/U_{\text{ges}}$ verursacht. Nach Abb. 10 ergibt sich eine gute Übereinstimmung der berechneten Freisetzung aus dem Brennelement mit der Freisetzung, die nach 5-stündiger Ausheizung bei 2000°C gemessen wurde.

Vergleicht man jedoch die berechnete Cäsiumverteilung (s. Abb. 11, 13 und Tab. IV) im Brennelement und Partikel vor und nach der Ausheizung mit den Werten, die bei der Nachuntersuchung einer nicht ausgeheizten Kugel (GO-8) und der ausgeheizten Kugel (GO-3) gemessen wurde, ergibt sich vor allem hinsichtlich des Kerninventars eine erhebliche Differenz. So wurde bei der nicht ausgeheizten Kugel eine Kernfreisetzung zwischen 3,5 - 7,8 % gemessen, während die Rechnung eine Freisetzung von 52 % ergibt. Auch bei Annahme einer niedrigeren Bestrahlungstemperatur von 730°C, die nach /13/ realistischer ist, ergibt die Rechnung noch eine Kernfreisetzung von 10 % (s. Abb. 12), was auf einen zu hohen, d.h. konservativen Kerndiffusionskoeffizienten schließen läßt. Die berechnete Freisetzung aus den Partikeln infolge Diffusion durch die HTI-Schicht vor der Ausheizung liegt mit der niederen Bestrahlungstemperatur aber deutlich niedriger (vgl. Abb. 10 und 12). Bei der Ausheizung auf 2000°C verläuft die Diffusion aus den Partikeln dann aber so schnell, daß sich bei beiden Anfangsbedingungen nahezu die gleichen Freisetzungskurven ergeben (vgl. Abb. 10 und 12).

Eine theoretische Interpretation der gemessenen Cäsiumverteilung von <1 % im Kern und 26 % in der Beschichtung nach der Ausheizung bereitet allerdings Schwierigkeiten, da nach den Meßwerten die Cäsiumkonzentration in der Beschichtung höher als die Cäsiumkonzentration im Kern liegen muß und somit das Cäsium aus dem Kern gegen ein Konzentrationsgefälle transportiert wird. Dies ist eventuell darauf zurückzuführen, daß Cäsium in der porösen Pufferschicht ähnlich wie am Graphit adsorbiert wird. Dadurch würde die Cäsiumkonzentration an der Kernoberfläche stark herabgesetzt werden, so daß die diffusionsbedingte Freisetzung aus dem Kern ähnlich wie eine Freisetzung in ein Vakuum verlaufen würde.

Ein solcher Effekt ließe sich durch Einbau eines Vergleichsfaktors zwischen der Konzentration an der Kernoberfläche und der Konzentration in der

Pufferschicht ähnlich wie bei der Randbedingung an der Graphitoberfläche berücksichtigen. Ebenso müßte dann natürlich auch ein Vergleichsfaktor zwischen Puffer und umgebender Beschichtung vorgesehen werden.

Es sollte hier aber noch erwähnt werden, daß in den bisherigen Rechnungen zur Spaltproduktfreisetzung aus HTR-Brennelementen bei Störfällen eine Rückhaltung durch die Pufferschicht stets vernachlässigt wurde und damit die bisherigen Ergebnisse weiterhin als konservativ angesehen werden können.

Die mit den Standarddiffusionskoeffizienten (s. Tab. II) berechnete Fractional-Release-Werte für Strontium sind in der Abb. 14 aufgetragen. Wie auch die gemessenen Daten in Tab. IV zeigt die Abb. 14, daß Strontium vor allem im oxidischen Partikelkern zurückgehalten wird. Allerdings ergibt die Rechnung eine deutlich niedrigere Freisetzung als die Meßergebnisse. Um die Rechnungen den Meßergebnissen anzupassen, müßten die Diffusionskoeffizienten im Graphit und im Kern um den Faktor 10 erhöht werden (s.a. Abb. 15).

Tab IV: Cäsium- und Strontiumverteilung in der Kugel G0-3
nach der 5-stündigen Ausheizung bei 2000°C
(berechnet mit Standarddiffusionskoeffizienten s. Tab. II)

	Spaltproduktverteilung (%)			
	Cs137		Sr90	
	gemessen	berechnet	gemessen	berechnet
Kern	<1	18	5	75
Beschichtung	26	22	2	2
Graphit	2	19	1	20
freigesetzt	72	41	92	3

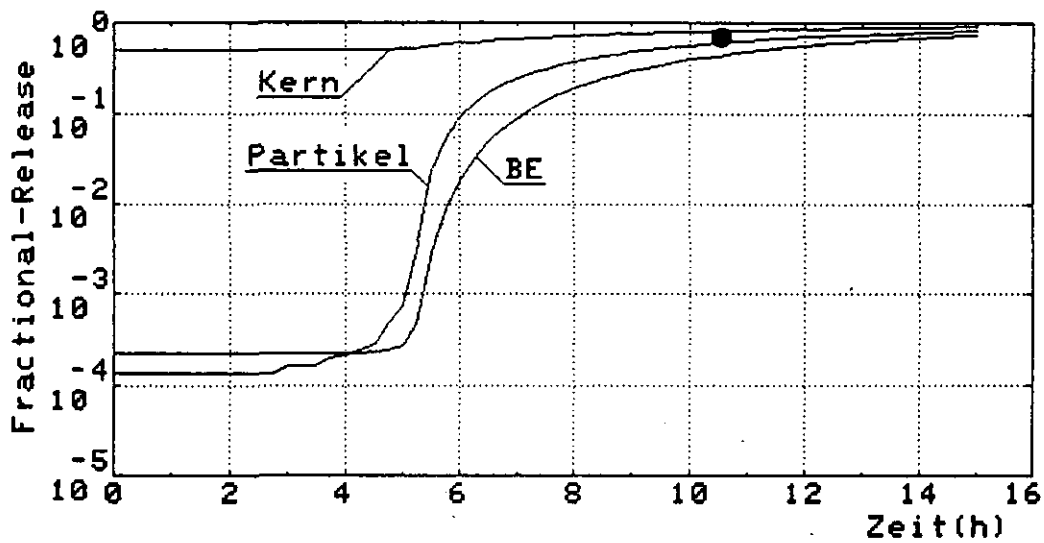


Abb. 10: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel G0-3 mit BISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1050^{\circ}\text{C}$; max. Ausheiztemperatur $T = 2000^{\circ}\text{C}$) (gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

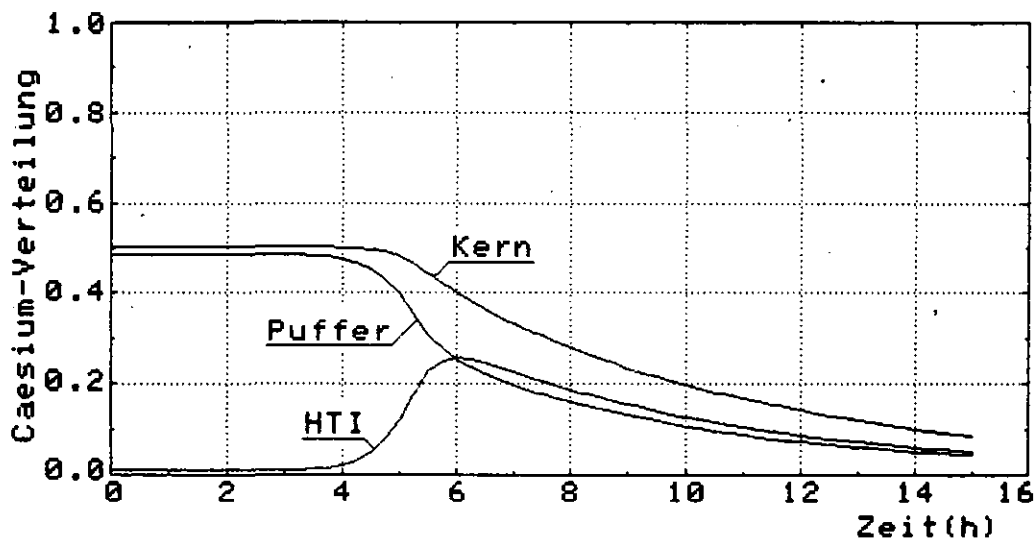


Abb 11: Cäsiumverteilung in der Kugel G0-3 während der Ausheizung (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1050^{\circ}\text{C}$; max. Ausheiztemperatur $T = 2000^{\circ}\text{C}$)

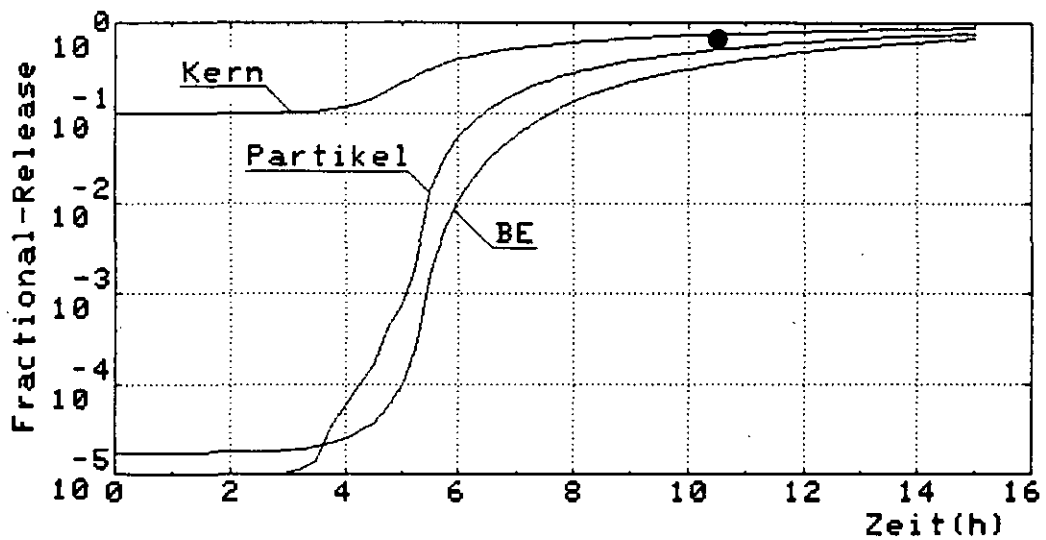


Abb. 12: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel G0-3 mit BISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 730^{\circ}\text{C}$; max. Ausheiztemperatur $T = 2000^{\circ}\text{C}$) (gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

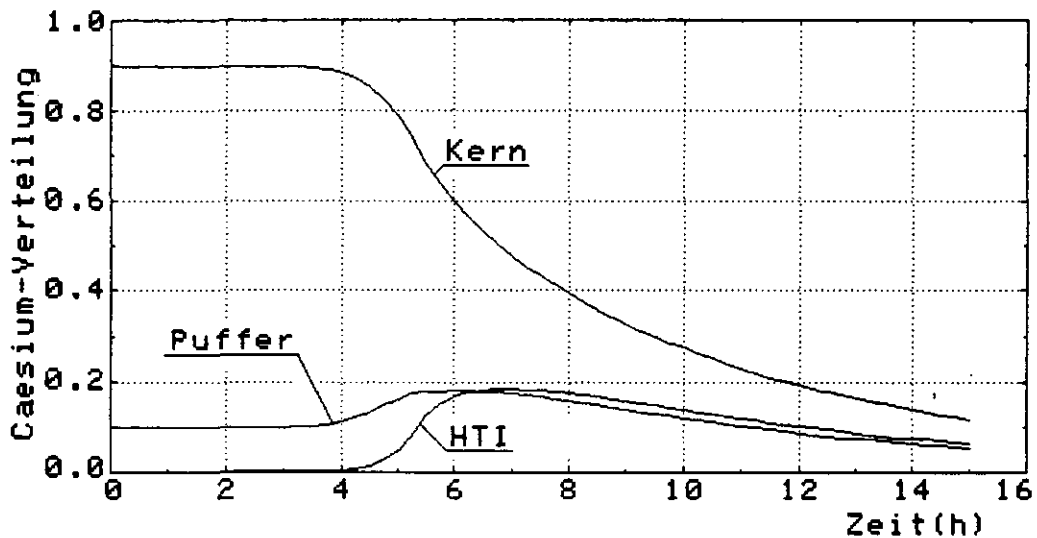


Abb. 13: Cäsiumverteilung in der Kugel G0-3 während der Ausheizung (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 730^{\circ}\text{C}$; max. Ausheiztemperatur $T = 2000^{\circ}\text{C}$)

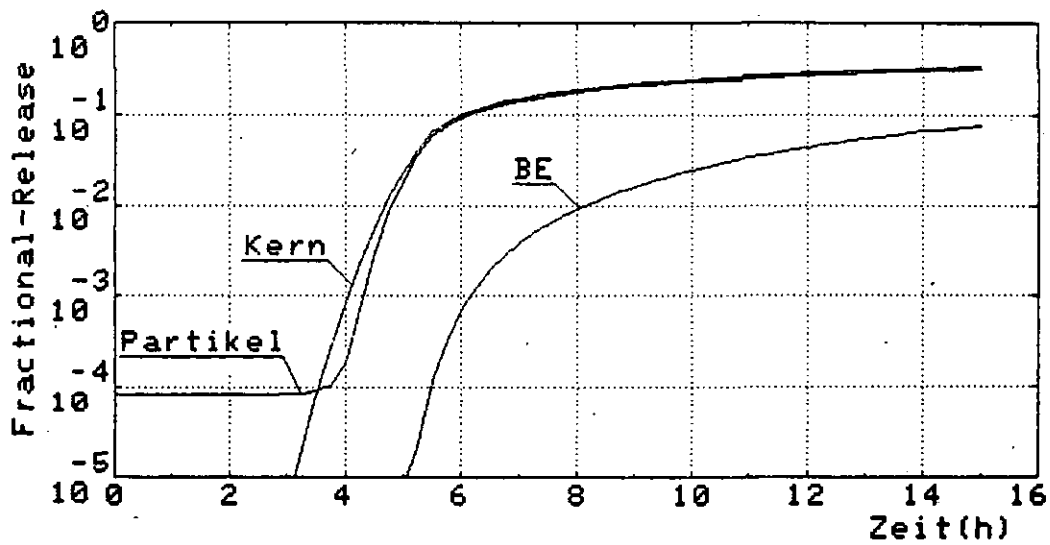


Abb. 14: Strontiumfreisetzung aus den Partikeln und Brennelement bei Kugel G0-3 mit BISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 730^{\circ}\text{C}$; max. Ausheiztemperatur $T = 2000^{\circ}\text{C}$)

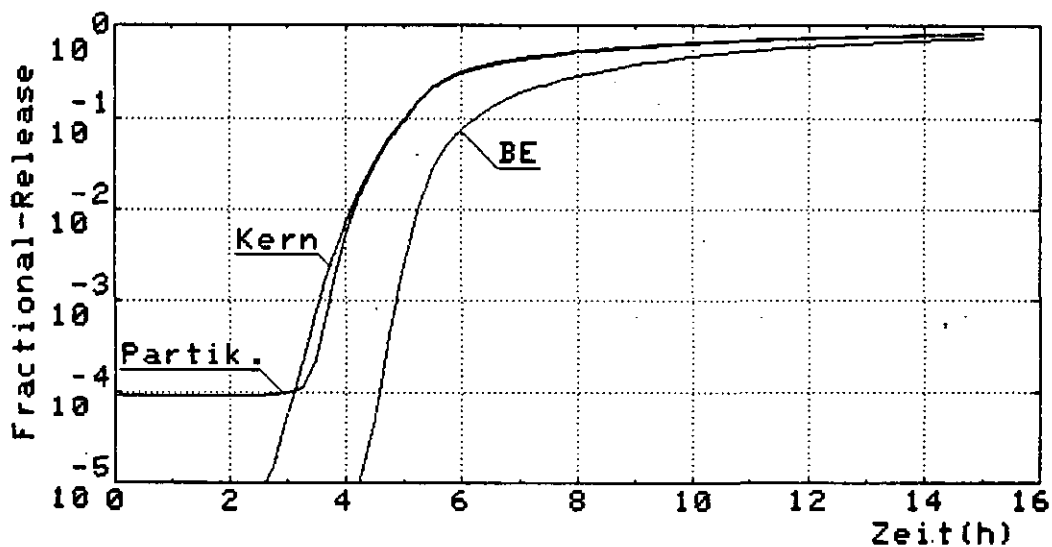


Abb. 15: Strontiumfreisetzung aus den Partikeln und Brennelement bei Kugel G0-3 mit BISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 730^{\circ}\text{C}$; max. Ausheiztemperatur $T = 2000^{\circ}\text{C}$; Graphit- und Kern-diffusionskoeffizienten um den Faktor 10 erhöht)

3.3 Nachrechnung der Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln

Zunächst ist in der Abb. 16 die Cäsiumfreisetzung, die für das 1400/1500/1600°C Glühexperiment mit den Standarddiffusionskoeffizienten (s. Tab. II) berechnet wurde, aufgetragen. Der Vergleich mit der von Schenk gemessenen Cäsiumfreisetzung zeigt, daß die berechnete Freisetzung etwas über eine Größenordnung zu tief liegt. Selbst wenn während der Bestrahlung eine Partikeltemperatur von 1250°C statt 1050°C unterstellt wird, ergibt die Rechnung noch eine deutlich niedrigere Freisetzung als die Messung (s. Abb. 17). Andererseits ist bei dieser hohen Bestrahlungstemperatur die berechnete Freisetzung während der Bestrahlungsvorgeschichte deutlich höher als der bei einer Nachuntersuchung einer gleich bestrahlten aber nicht ausgeheizten Kugel gemessene Wert von etwa $3 \cdot 10^{-4}$ (Kugel FRJ2-K11/04, s. /10/).

Gegenüber den Messungen von Schenk und Brown am FRJ2-K11/03 sind offenbar die verwendeten Diffusionskoeffizienten bei der Ausheiztemperatur zu klein. Dies gilt hauptsächlich für die SiC-Schicht, was deutlich aus den Konzentrationsprofilen im Partikel (s. Abb. 18 und 19) ersichtlich ist. Aus dem Konzentrationsverlauf vor der Ausheizung (Abb. 18) wird zusätzlich deutlich, daß wie in den Abb. 16 und 17 gezeigt, bei einer Bestrahlungstemperatur von 1250°C eine erheblich größere Cäsiumfreisetzung als bei einer Bestrahlungstemperatur von 1050°C zu erwarten ist.

Daher wurden weitere Rechnungen mit einem anderen Diffusionskoeffizienten für die SiC-Schicht durchgeführt. Dieser Diffusionskoeffizient wurde von Nabelek /14/ durch eine Arrhenius-Anpassung der in der Literatur von verschiedenen Autoren angegebenen Diffusionsdaten gewonnen (s. Abb. 20) und läßt sich durch die Gleichung

$$D = 0,13 \text{ [cm}^2\text{/sec]} * \exp (-377 \text{ [kJ/Mol]}/R \cdot T) \quad (3-3)$$

wiedergeben.

Auch mit diesem Diffusionskoeffizienten ergibt die Rechnung eine Cäsiumfreisetzung, die noch deutlich unter den gemessenen Werten liegt (siehe Abb. 21). Erst wenn man den oberen Wert des Vertrauensbereiches für den SiC-Diffusionskoeffizienten einsetzt, der sich nach /14/ in dem betrachteten Temperaturbereich durch die Gleichung

$$D = 67,6 \text{ [cm}^2\text{/sec]} * \exp (-459 \text{ [kJ/Mol]}/R \cdot T) \quad (3-4)$$

wiedergeben läßt, erhält man eine gute Übereinstimmung zwischen der gemessenen und berechneten Cäsiumfreisetzung aus dem Brennelement.

Um den Einfluß der angenommenen Temperatur während der Bestrahlung aufzuzeigen, wurden weitere Rechnungen durchgeführt, in denen jeweils eine Bestrahlungstemperatur von 1050, 1150 und 1250°C unterstellt wurde. An den sich daraus ergebenden Konzentrationsprofilen (s. Abb. 23) vor der Ausheizung wird deutlich, daß bei den Temperaturen 1050 und 1150°C die Diffusionsfront noch nicht durchgebrochen ist, und eine Spaltproduktkonzentration an der Außenseite der SiC-Schicht nur infolge der Urkontamination auftritt. Bei 1250°C allerdings erfolgt bereits in der kurzen Bestrahlungszeit (260 Tage für FRJ2-K11) ein Durchbruch der Diffusionsfront durch die SiC-Schicht. Bei der hohen Ausheiztemperatur von 1600°C diffundiert das Cäsium dann so schnell in der SiC-Schicht, daß bereits nach 50 Stunden in allen drei Fällen die Konzentrationsprofile nahezu gleich sind (s. Abb. 24).

Die dazugehörigen Kurven zur Cäsiumfreisetzung aus den Partikelkernen und aus den Partikeln sind in der Abb. 25 und 26 aufgetragen. Der Vergleich dieser Kurven zeigt, daß die unterstellte Bestrahlungstemperatur nur einen relativ geringfügigen Einfluß auf die berechnete Cäsiumfreisetzung während der Ausheizung hat und die Auswirkungen noch deutlich innerhalb des Vertrauensbereiches des SiC-Diffusionskoeffizienten liegen.

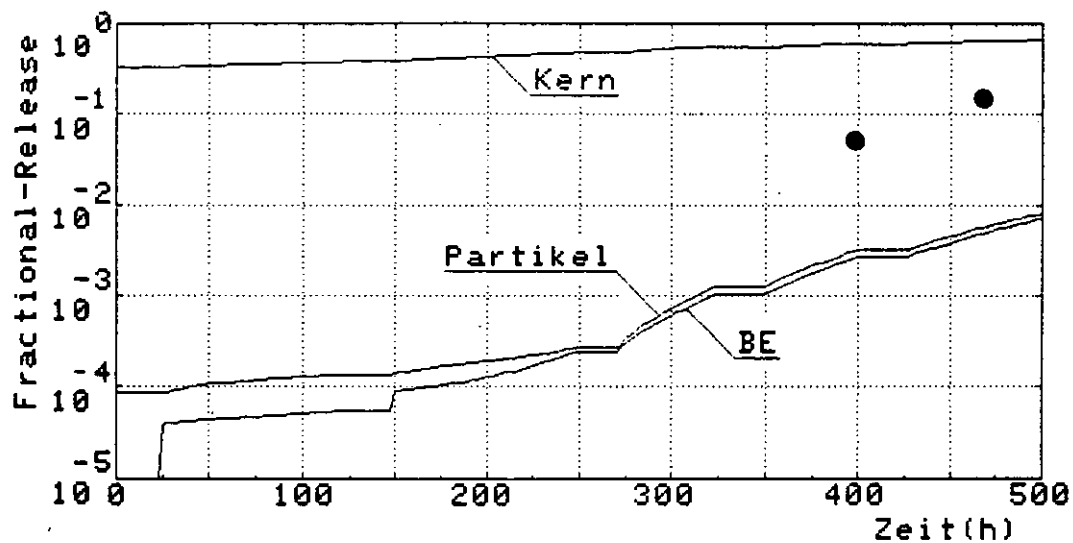


Abb. 16: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1050^{\circ}\text{C}$; berechnet mit Standarddiffusionskoeffizienten s. Tab. II) (gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

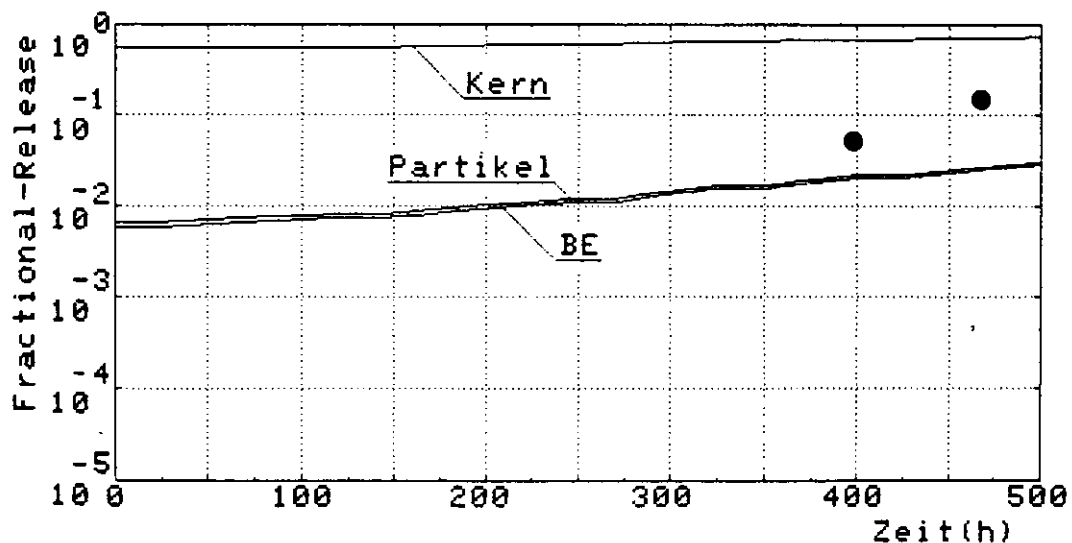


Abb. 17: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1250^{\circ}\text{C}$; berechnet mit Standarddiffusionskoeffizienten s. Tab. II) (gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

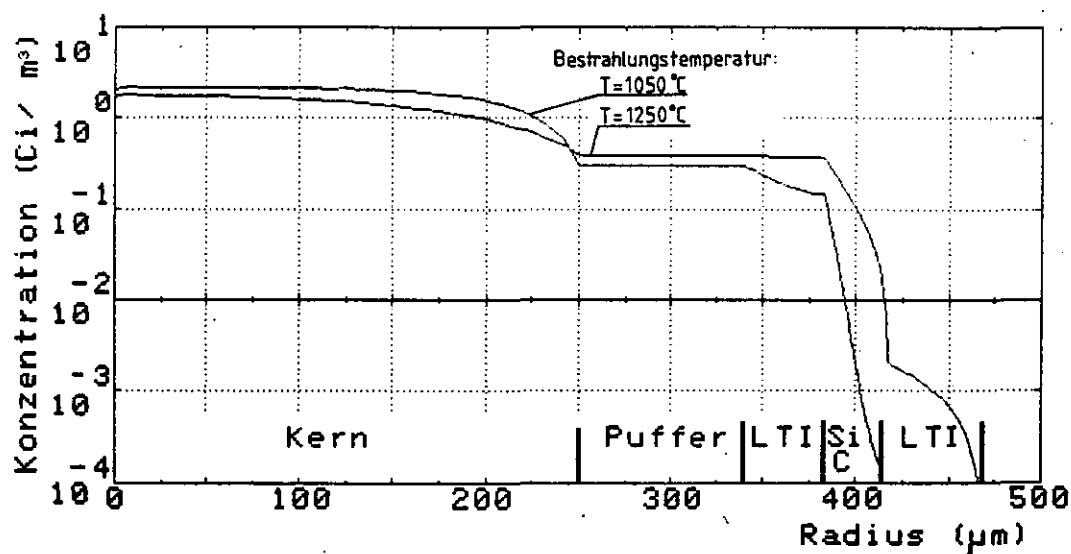


Abb. 18: Berechnete Cs137 -Konzentration in den Partikeln der Kugel FRJ2-K11 vor der Ausheizung (berechnet mit Standarddiffusionskoeffizienten s. Tab. II)

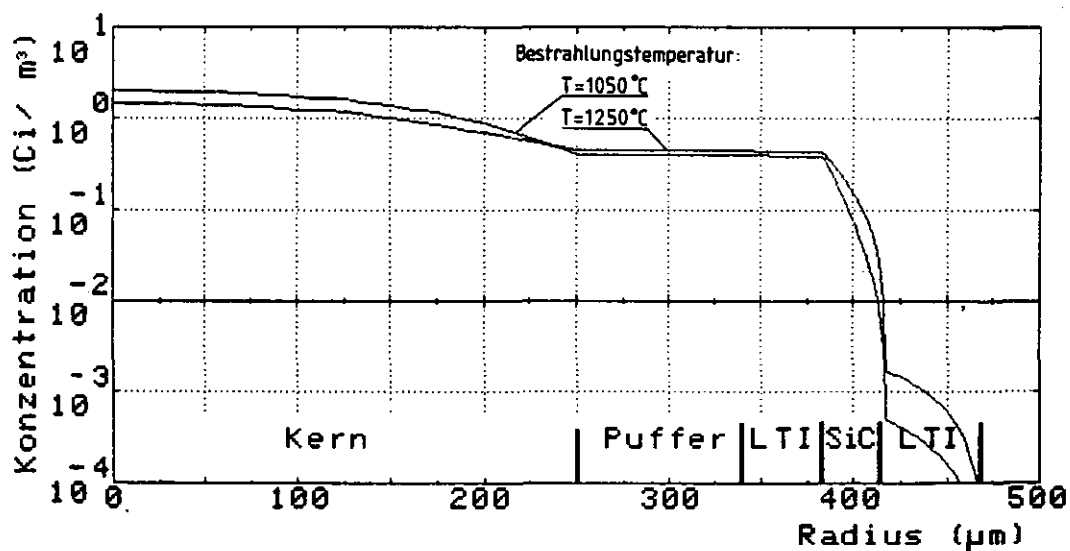


Abb. 19: Berechnete Cs137 -Konzentration in den Partikeln der Kugel FRJ2-K11 nach 50 Stunden Ausheizung bei 1600°C (berechnet mit Standarddiffusionskoeffizienten s. Tab. II)

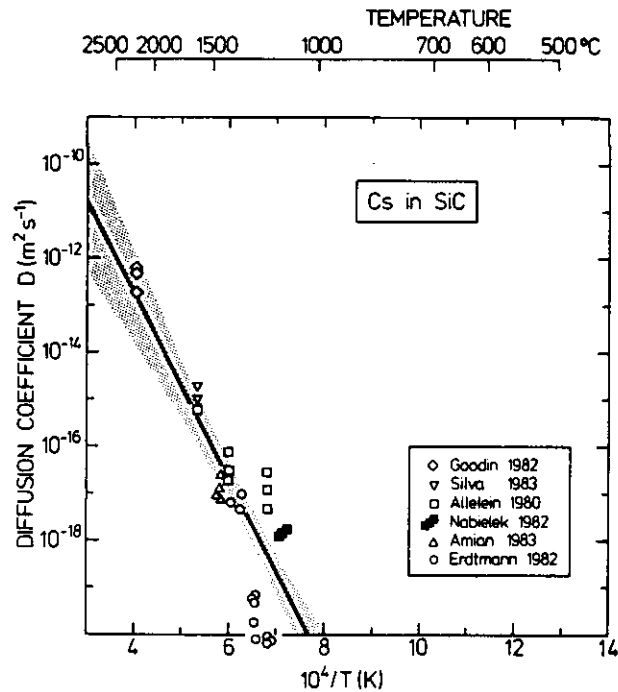


Abb. 20: Temperaturabhängiger Diffusionskoeffizient für Cäsium in Siliziumcarbid (aus /14/)

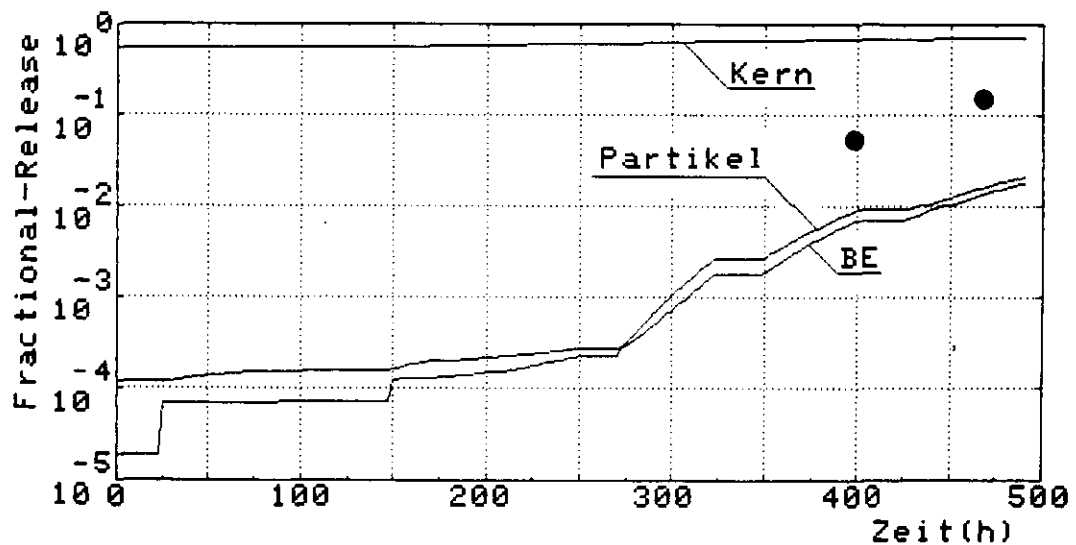


Abb. 21: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1250^{\circ}\text{C}$; berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. (3-3)) (gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

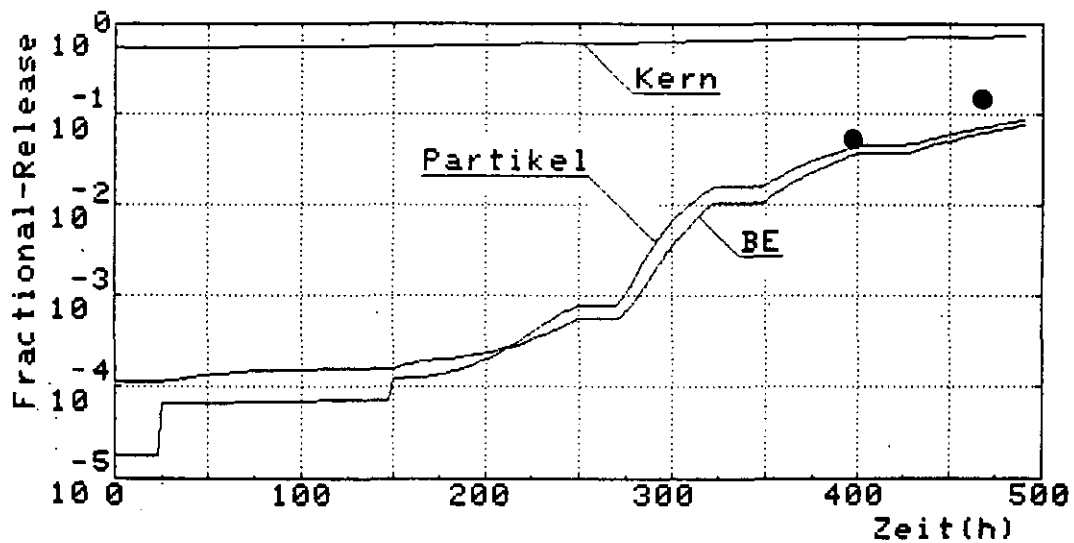


Abb. 22: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1250^{\circ}\text{C}$; berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. (3-4))
(gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

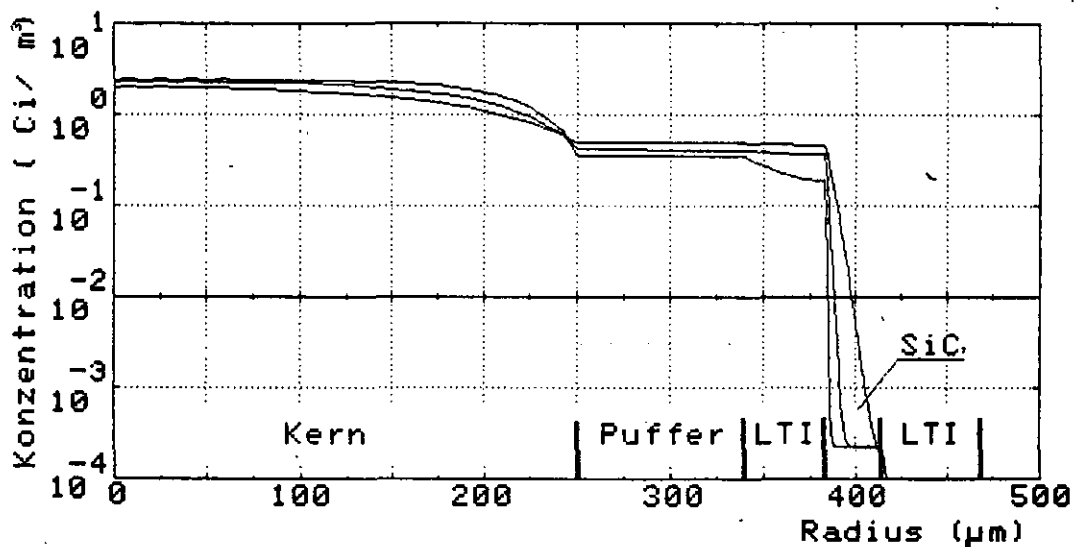


Abb. 23: Berechnete Cs137-Konzentration in den Partikeln der Kugel FRJ2-K11 vor der Ausheizung bei unterstellten Bestrahlungstemperaturen von 1050 , 1150 und 1250°C (berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. (3-3))

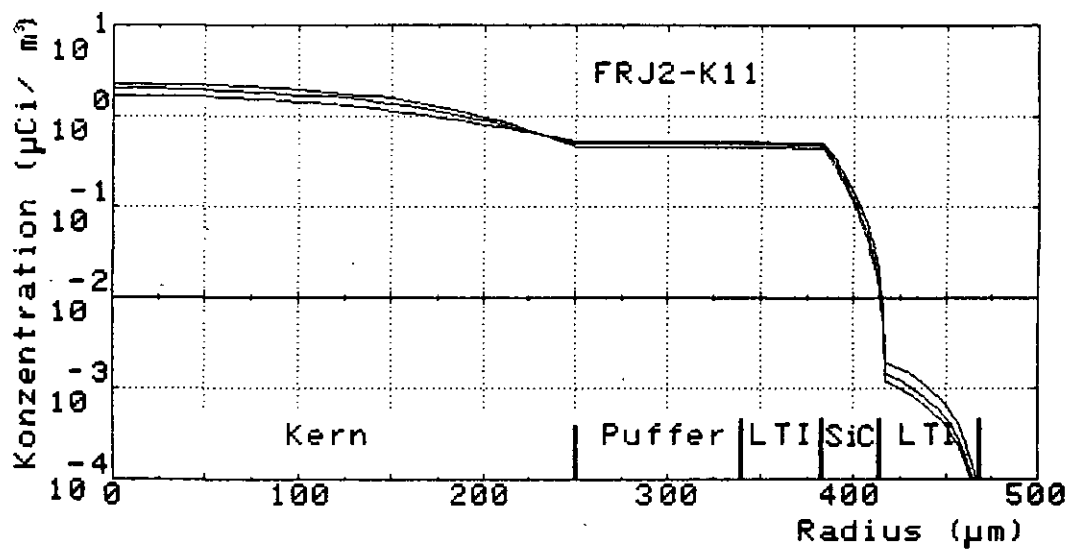


Abb. 24: Berechnete Cs137-Konzentration in den Partikeln der Kugel FRJ2-K11 nach 50 Stunden Ausheizung bei 1600°C (berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. (3-3))

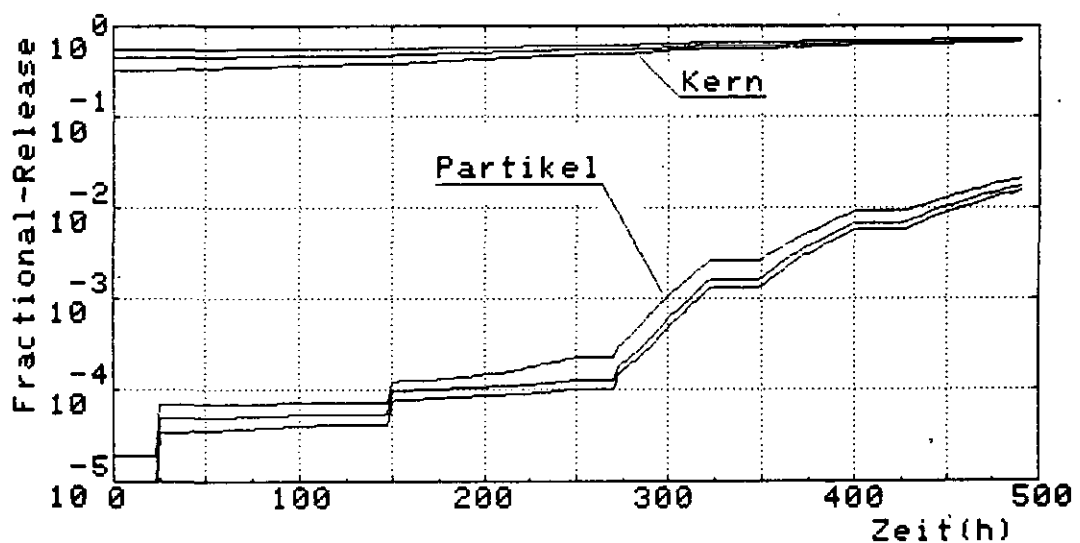


Abb. 25: Berechnete Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln bei unterstellten Bestrahlungstemperaturen von 1050, 1150 und 1250°C (berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. (3-3))

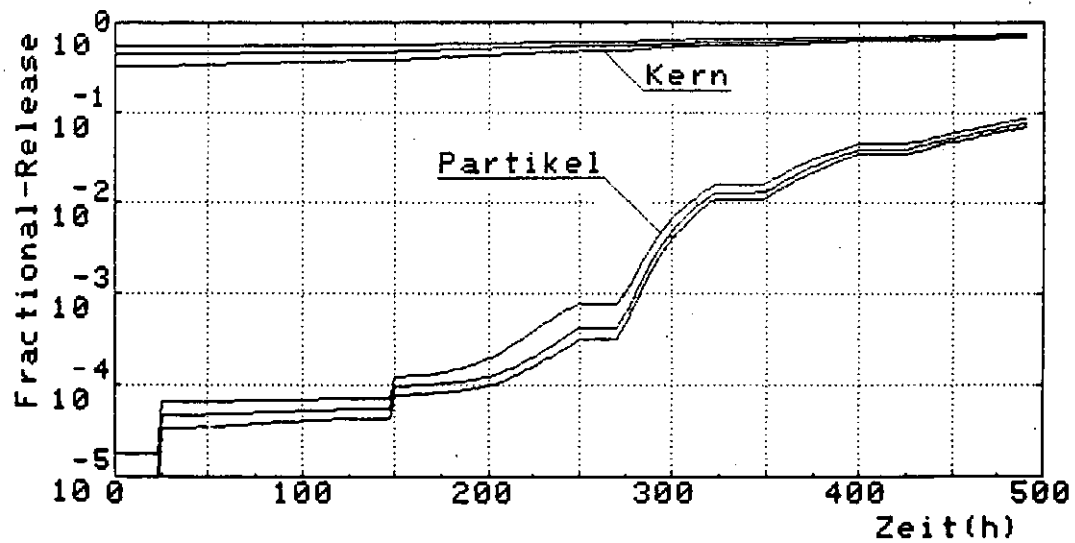


Abb. 26: Berechnete Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel FRJ2-K11 mit TRISO-Partikeln bei unterstellten Bestrahlungstemperaturen von 1050, 1150 und 1250°C (berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. (3-4))

3.4 Nachrechnung der Kugel R2-K12 mit TRISO-Partikeln

Die Kugel R2-K12/4 enthielt 200 μm UC_2 TRISO-Abbrandpartikel und 500 μm ThO_2 TRISO-Brutpartikel. In den Rechnungen wurde vereinfachend nur die Cäsiumfreisetzung aus den Abbrandpartikeln berücksichtigt.

Weiterhin ist zubeachten, daß die Feed-Partikel einen UC_2 -Kern enthielten, der Kerndiffusionskoeffizient in Tab. II aber nur für oxydische Kerne angegeben wird. Dieser Diffusionskoeffizient wurde aber trotzdem beibehalten, da die vorhergehenden Ergebnisse zeigten, daß die Kernfreisetzung nur einen geringen Einfluß auf die Partikelfreisetzung hat und zudem in der Literatur nur wenig Angaben über Cäsium-Diffusionskoeffizienten im UC_2 -Kern zu finden sind.

Die so berechnete Cäsiumfreisetzung mit dem SiC-Diffusionskoeffizienten nach Tab. II ist in der Abb. 27 aufgetragen. Auch hier wird durch den Vergleich mit den Meßwerten deutlich, daß mit diesem SiC-Diffusionskoeffizienten eine erheblich zu kleine Freisetzung berechnet wird. Mit dem neuen von /14/ empfohlenen SiC-Diffusionskoeffizienten (s. Gl. 3-3) ergibt sich bereits eine wesentlich bessere Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung (s. Abb. 28). Aber genau wie bei der Kugel FRJ2-K11 ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen berechneter und gemessener Freisetzung erst, wenn der Wert für den oberen 95%-Vertrauensbereich (s. Gl. 3-4) eingesetzt wird (s. Abb. 29).

Zu beachten ist allerdings, daß die Diffusionskoeffizienten nach Gl. 3-3 und Gl. 3-4 infolge der hohen Aktivierungsenergie bei Temperaturen unter ca. 1500°C kleiner als der SiC-Diffusionskoeffizient aus der Tab. II sind. Daher ergibt sich bei diesen Temperaturen eine deutlich niedrigere Freisetzung aus den Partikeln, wie der Vergleich der Partikelfreisetzung in den ersten 50 Stunden in den Abb. 27 - 29 zeigt. Für die Abschätzung der Cäsiumfreisetzung unter Normalbetriebsbedingungen sollte daher weiterhin der SiC-Diffusionskoeffizient nach Tab. II eingesetzt werden.

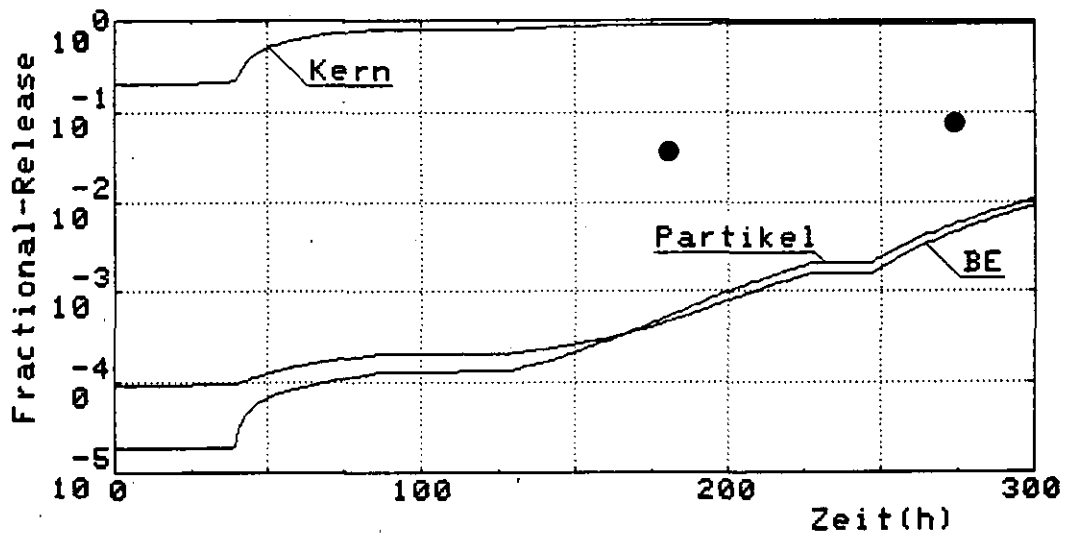


Abb. 27: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel R2-K12 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1050^\circ\text{C}$; berechnet mit Standarddiffusionskoeffizienten s. Tab. II; gemessene BE-Freisetzung aus /11/).

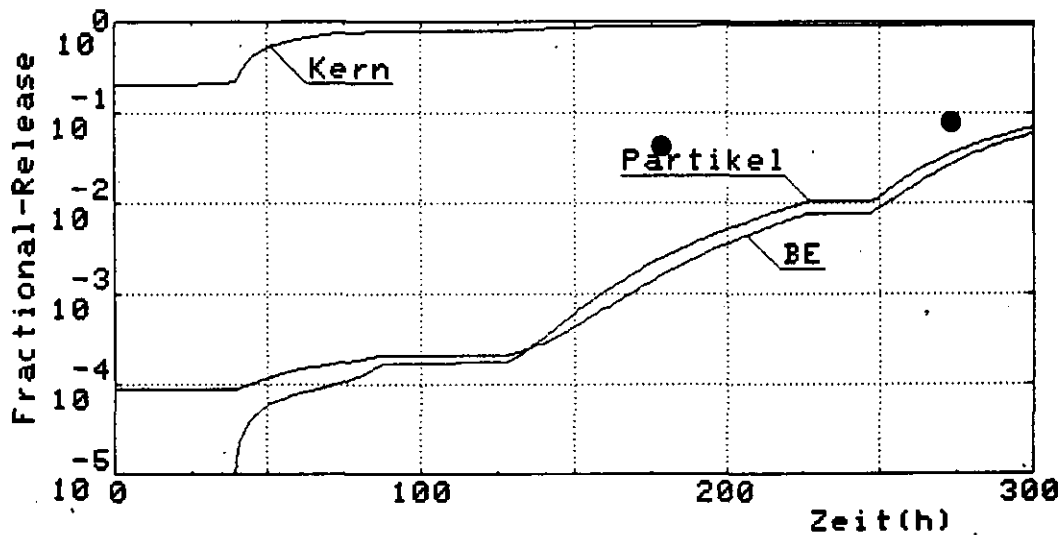


Abb. 28: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel R2-K12 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1050^\circ\text{C}$; berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. 3-3; gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

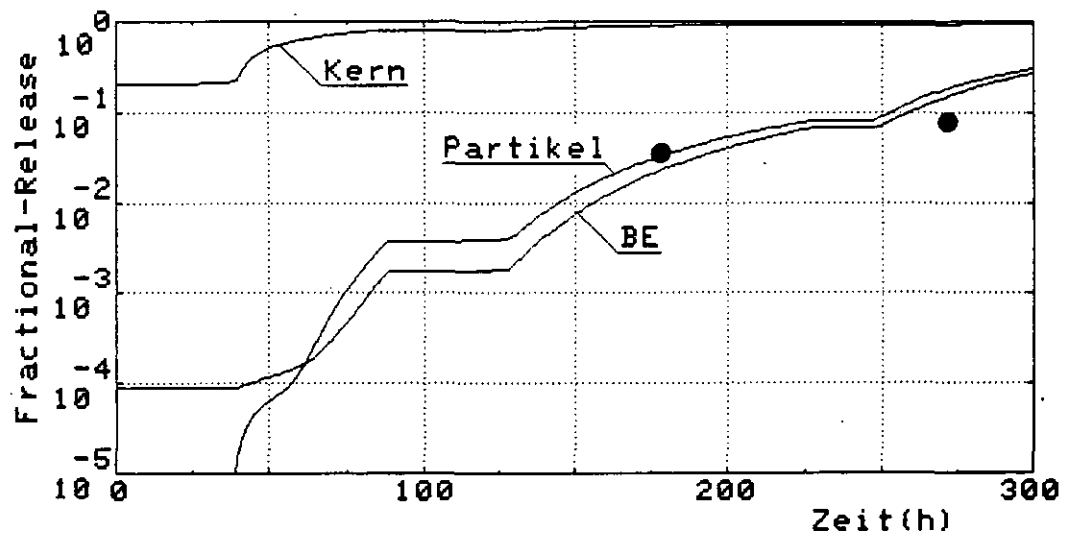


Abb. 29: Cäsiumfreisetzung aus Partikel und Brennelement bei Kugel R2-K12 mit TRISO-Partikeln (unterstellte Bestrahlungstemperatur $T = 1050^\circ\text{C}$; berechnet mit SiC-Diffusionskoeffizienten nach Gl. 3-4; gemessene BE-Freisetzung aus /11/)

4. Zusammenfassung

Das modular aufgebaute Rechenprogramm FRESCO, das zur Berechnung der Spaltproduktfreisetzung aus dem Reaktorkern unter Störfallbedingungen entwickelt wurde, wurde durch Austauschen einiger Programmoduln so erweitert, daß auch Transportmechanismen (z.B. Recoil) berücksichtigt werden, die nur unter Normalbetriebsbedingungen oder bei Bestrahlungsexperimenten eine Rolle spielen. Damit steht auf der Basis der heutigen Modellvorstellungen zum Spaltprodukttransport aus HTR-Brennelementen ein modular aufgebautes und damit übersichtliches Rechenprogramm zur Verfügung, das zur Nachrechnung von Bestrahlungs- und Ausheizexperimenten verwendet werden kann sowie zur Abschätzung der Spaltproduktfreisetzung aus den Brennelementen eines Hochtemperaturreaktors unter Normalbetriebsbedingungen dienen kann.

In dem Rechenprogramm sind die folgenden wesentlichen Transportmechanismen modelliert:

- Spaltprodukt diffusion aus dem Brennstoffkern und durch die Partikelbeschichtungen
- Spaltproduktfreisetzung aus Partikelkern und Partikel sowie von der Brennelementoberfläche infolge des Recoil-Effektes
- Volumendiffusion von Spaltprodukten aus den Graphitkörnern zu den Korngrenzen
- Korngrenzendiffusion der Spaltprodukte im Graphit
- Adsorption der Spaltprodukte am Graphit

Um eine Erweiterung der Modellvorstellungen berücksichtigen zu können, wurde das Rechenprogramm so aufgebaut, daß dies durch einfaches Austauschen der entsprechenden Programmoduln ohne großen Aufwand möglich ist.

Anschließend wurden mit dem Programm die Cäsium- und Strontiumfreisetzung für drei Ausheizexperimente nachgerechnet. Dabei ergab sich im wesentlichen folgendes:

Bei Brennelementen mit BISO-Partikeln stimmte die mit dem HBK-Standarddatensatz berechnete Cäsiumfreisetzung gut mit den gemessenen Freisetzungswerten überein. Um die gemessene Strontiumfreisetzung aus den BISO-Partikeln nachzuvollziehen, mußten die Diffusionskoeffizienten im $(\text{Th,U})\text{O}_2$ -

Kern und im A-3-Matrixgraphit gegenüber dem HBK-Standarddatensatz um den Faktor 10 angehoben werden. Dies liegt im statistischen Vertrauensbereich der ursprünglich bei 1000 - 1500°C ermittelten Daten.

Bei Brennelementen mit TRISO-Partikeln ergab die Rechnung mit dem HBK-Standarddatensatz eine deutlich niedrigere Cäsiumfreisetzung als die Messungen. Dies ließ sich anhand der Konzentrationsprofile in den Partikeln vor allem durch einen zu niedrigen Diffusionskoeffizienten in der SiC-Schicht erklären. Unter der Annahme, daß bei den geglühten Brennelementen FRJ2-K11 und R2-K12 keine Absonderheiten in Brennstoffherstellung, Bestrahlung und Nachbestrahlungsbehandlung auftreten, muß ein gegenüber dem Standarddatensatz höherer Diffusionskoeffizient von Cäsium in SiC angesetzt werden. Der neue Wert liegt an der oberen Konfidenzgrenze der aus allen gegenwärtig verfügbaren Freisetzungsdaten erhaltenen Datenmenge.

Zusammenfassend läßt sich somit sagen, daß mit den im vorliegenden Rechenprogramm enthaltenen Diffusionsmodellen die Freisetzung der metallischen Spaltprodukte Cäsium und Strontium aus HTR-Brennelementen unter Störfallbedingungen gut beschrieben werden kann. Eine weitergehende theoretische Beschreibung des Spaltprodukttransports aus den Partikeln und im Graphit ließe zwar u.U. eine noch bessere Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung erwarten, hätte aber den Nachteil, daß die erforderlichen Parameter kaum experimentell überprüft werden könnten.

5. Literatur

- /1/ Petersen, K.; Schenk, W.:
Inhärente Temperaturstabilisierung als Grundprinzip der Sicherheitstechnik verbrauchernah errichteter nuklearer Wärmequellen mit Hochtemperaturreaktoren
Jahrestagung Kerntechnik, 1981 in Düsseldorf

- /2/ Uhlenbusch, L.:
Anwendung von Zwei-Phasen-Diffusion zur Beschreibung der Freisetzung von Cäsium aus kugelförmigen HTR-Brennelementen
Jül-1323, KFA Jülich 1976

- /3/ Zoller, P.:
Das Transportverhalten der Spaltprodukte Cäsium und Strontium in beschichteten Brennstoffteilchen für Hochtemperaturreaktoren unter Bestrahlungsbedingungen
Jül-1324, KFA Jülich 1976

- /4/ Kröhn, H.:
Freisetzung von Spaltprodukten aus dem Core eines Kugelhaufenreaktors bei Störfällen mit Core-Aufheizung
Jül-1791, KFA Jülich 1982

- /5/ Ehrhardt, K.-D.:
PLATO - Ein Programm zur Berechnung der Spaltproduktablagerung
Jül-Spez-135, KFA Jülich 1981

- /6/ Müller, A.:
Freisetzung gasförmiger Spaltprodukte (Kr, Xe, J) aus Brennelementen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren
Jül-1295, KFA Jülich 1976

- /7/ Biedermann, P.R.D.:
Rechnerische Analyse der Cäsium-Diffusion in Bestrahlungsexperimenten
Jül-1769, KFA Jülich 1982

- /8/ Ames, W. F.:
Numerical Methods for Partial Differential Equations
Nelson-Verlag, London 1969

- /9/ Brown, P. E.; Inns, A. J.:
Post-Irradiation Examinations of AVR-Spherical-Fuels
GO 3, 4, 8 & 9 - GK 10 & 11 - GFB 2-1, 2 & 3
UKAEA, G2237, Harwell 1982

- /10/ Brown, P. E.; Inns, A. J.:
Post-Irradiation Examinations of Special-Fuel Elements from
Irradiation Experiments FRJ2-K10 and K11
UKAEA, G2240, Harwell 1982

- /11/ Schenk, W.:
Störfallsimulation an bestrahlten Brennelementen bei Temperaturen
von 1400 - 2500°C
Jül-Bericht in Vorbereitung 1983

- /12/ HBK-Projektbericht
KFA-HBK-IB-1/82, KFA-Jülich 1982

- /13/ Nabielek, H.:
Persönliche Mitteilung 1983

- /14/ Nabielek, H.:
Persönliche Mitteilung 1983
Erscheint im HBK-Quartalsbericht 1/83

- /15/ Jordan, W.:
Strukturierte Programmierung
Springer-Verlag, New York 1978

6. Anhang

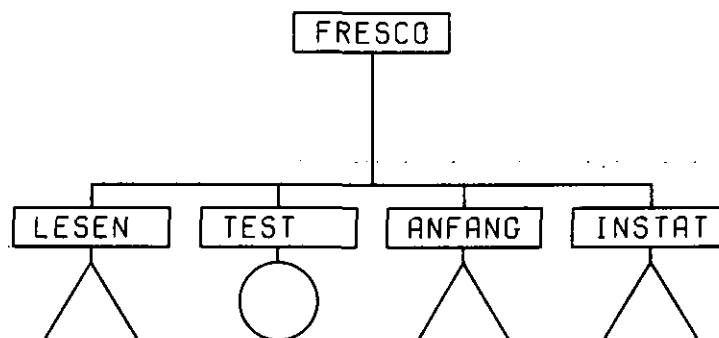
Beschreibung des Rechenprogrammes

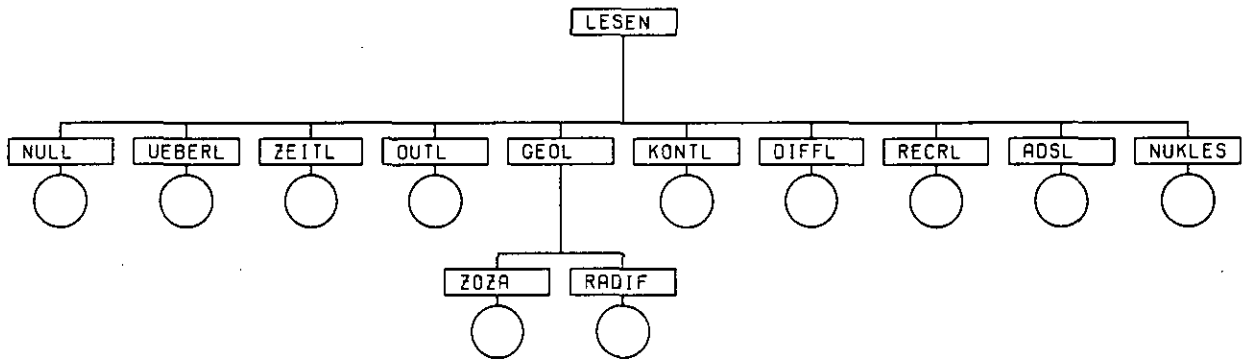
Das vorliegende Rechenprogramm wurde wie schon erwähnt nach der Methode der strukturierten Programmierung (s. /15/) entwickelt. Das Ziel dieser Methode besteht vor allem darin, lesbare und damit zuverlässige Programme zu erstellen. Außerdem wird durch die klare Abgrenzung von Programmteilen deren Austauschbarkeit und eine problemlose Kopplung mit anderen Rechenprogrammen gewährleistet. Auch die Programmbeschreibung wird dadurch wesentlich erleichtert.

Zur Beschreibung des Programmes werden zunächst alle Unterprogramme und deren Zusammenhang in sogenannten Baumdiagrammen aufgeführt.

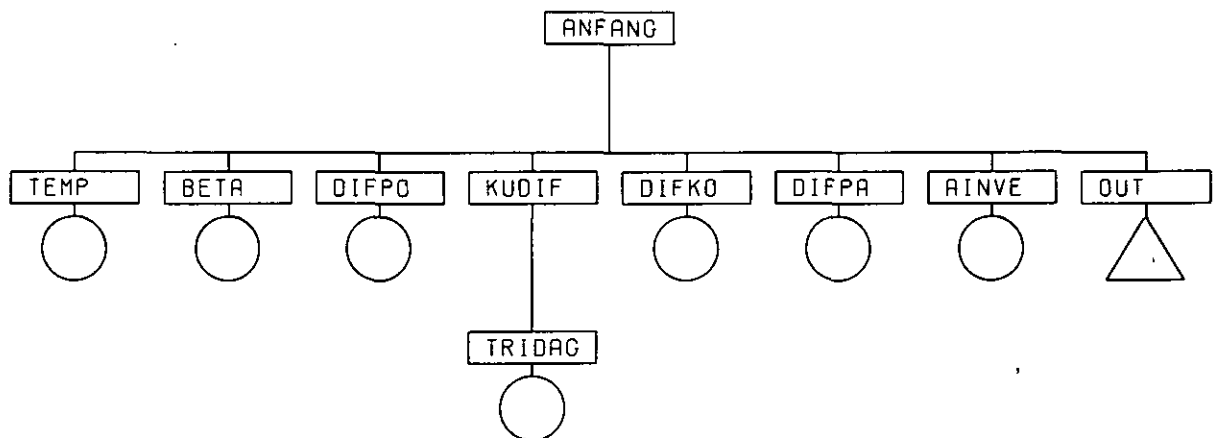
Weiterhin sind Flußdiagramme für das Hauptprogramm und die wichtigsten Unterprogramme aufgeführt. Weitere Programmdetails und die Übergabeparameter sind im Programmlisting durch Kommentarkarten beschrieben.

Als letztes werden dann die benötigten Eingabedaten beschrieben, wobei auch deren aus programmtechnischen Gründen erforderlichen Einschränkungen (z.B. maximale Stützpunktzahlen) mit aufgeführt werden.

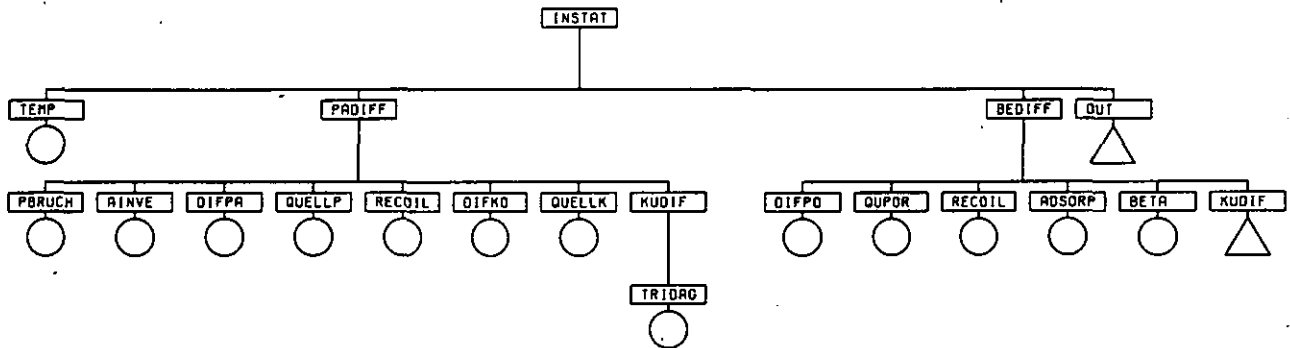




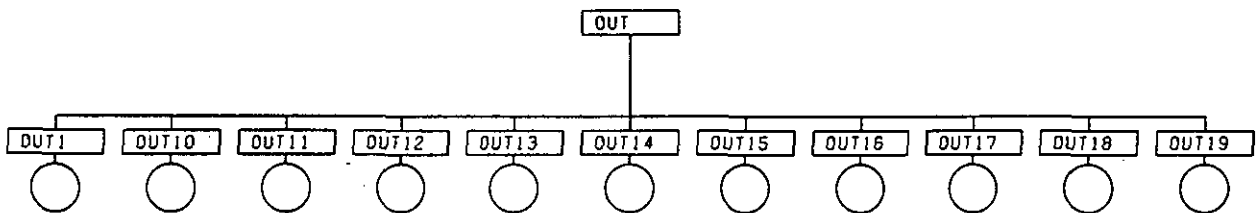
PROGRAMMUEBERSICHT FRESCO-II



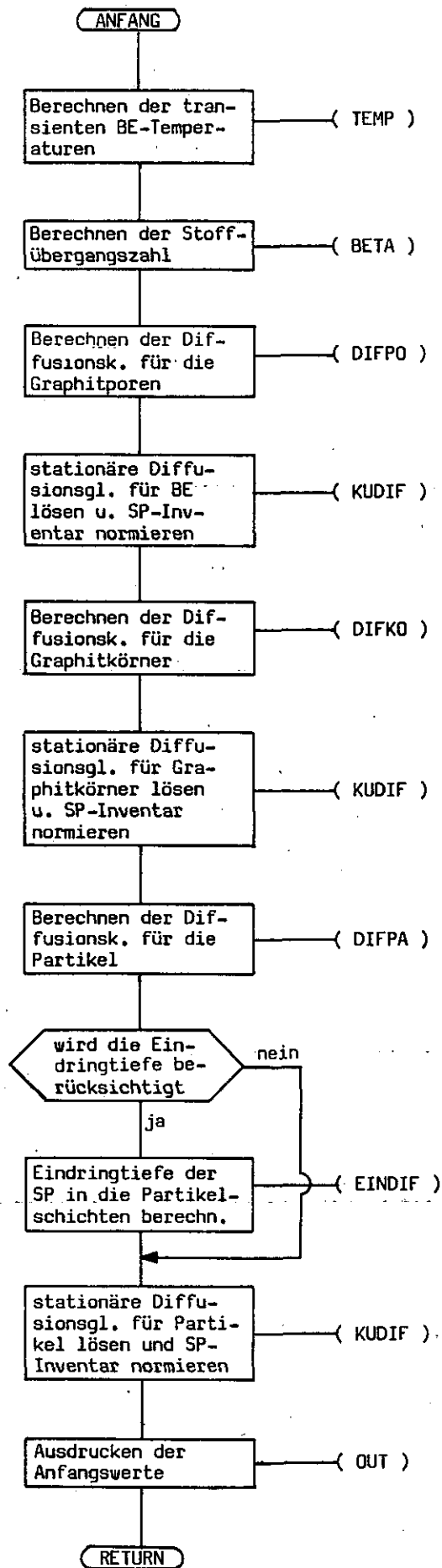
PROGRAMMUEBERSICHT FRESCO-III

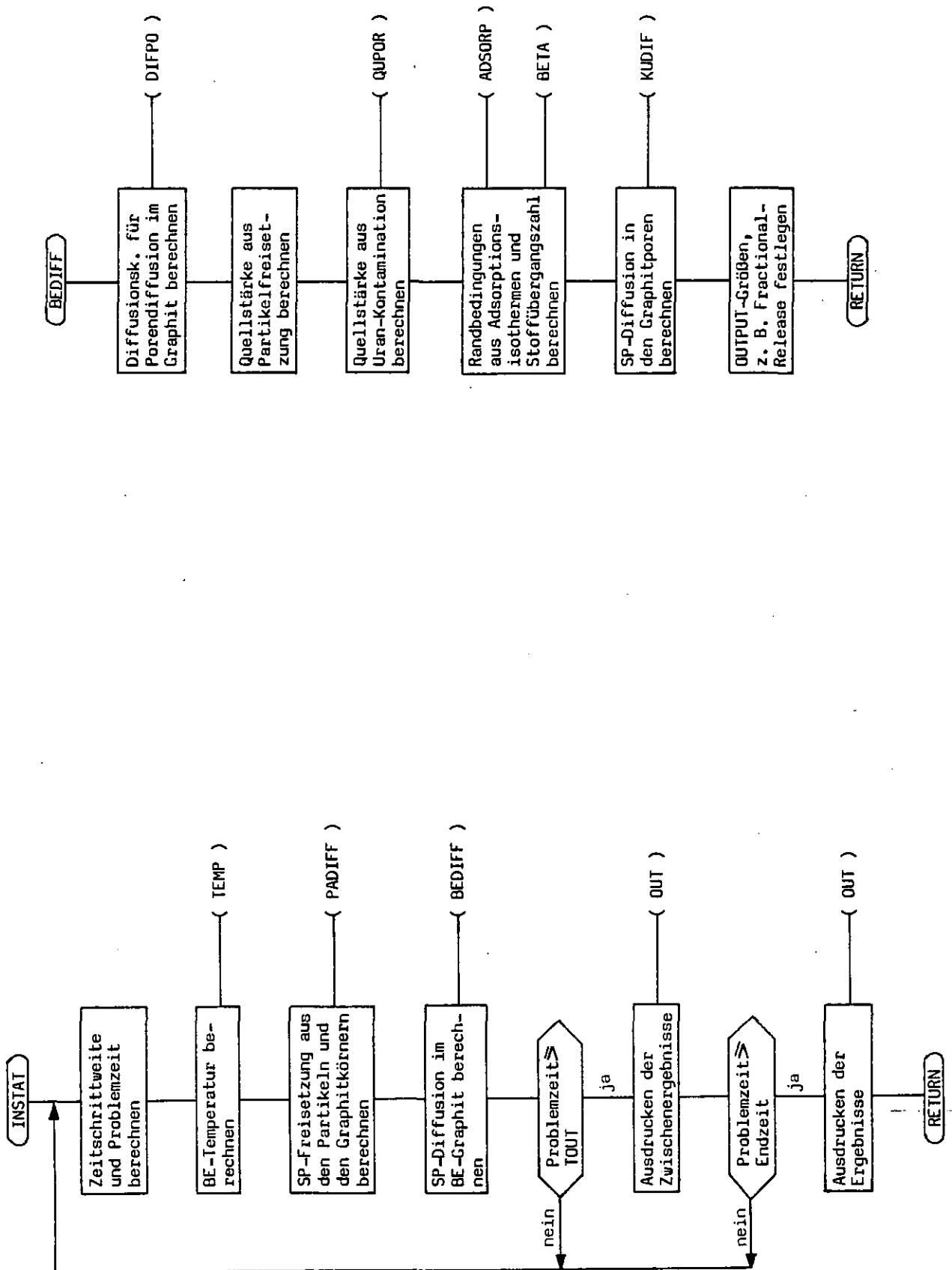


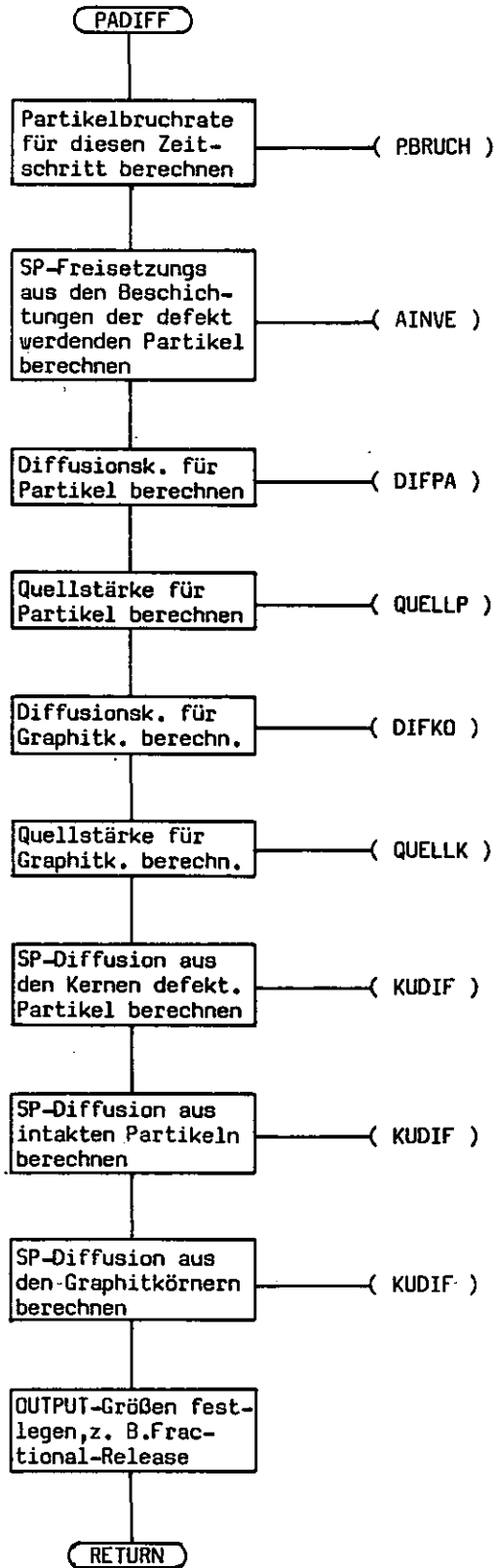
PROGRAMMUEBERSICHT FRESCO-II



PROGRAMMUEBERSICHT FRESCO-II







2

2. UEBERSCHRIFT

(I) TEXT TEXT
TEXT MIT MAX 240 BUCHSTABEN (4 KARTEN)
DIESER TEXT STEHT UEBER DER AUSGABE UND IST
FUER DIE RECHNUNG OHNE BEDEUTUNG.

CS137-FREISETZUNG AUS DER KUGEL GO-3 WAEREND DER BESTRAHLUNGS- UND AUSKEIZZEIT
RECHNUNGEN MIT 'STANDARDORTEN' NACH HELMBOLD, JUEL 1674

3 STEIFIGKEITSPARAMETER

(R) TE(1) (SEC) 1-1.N IN KLEINER ODER GLEICH 51
GIBT DIE ZEITPUNKTE AN, BEI DENEN JEWELNS
OT UND OTQUT GEÄNDERT WERDEN.

1.368 F8 1.3683638

```
(R) DT(1) (SEC)
      I=1,N IN KLEINER ODER GLEICH 5)
      OT(1) GIBT DIE ZEITSCHRITTLANGE+AN, MIT
      DER ZWISCHEN TEIL-1) UND TEIL) GERECHNET
      WERDEN SOLL
```

8.64 E+4 100.0

1
3
1

FRESCO-11 (VERSION ZUR BERECHNUNG DER SPALTPRODUKT-FREISETZUNG UNTER NORMALBETRIEBSDINGUNGEN UND FUER BESTRAHLUNGSEXPERIMENTE

* BESCHREIBUNG DER EINGABEDATEN *

DEN EINGEBREKARTEN KÖNNEN KOMMENTARKARTEN, DIE MIT EINEM BELIEBIGEN ZEICHEN IN DER ERSTEN SPALTE GEKENNZEICHNET WERDEN MÜSSEN, BEIGEFÜGT WERDEN. NUR KARTEN MIT EINEM BLANK IN DER ERSTEN SPALTE WERDEN ALS DATENKARTEN GELESEN. AUSSERDEM KANN JEDE DATENKARTE IN DER 61-80 SPALTE DURCH BELIEBIGE ZEICHEN GEKENNZEICHNET WERDEN.

DAS EINGESPEICHERTE FORMAT IST 6E10.0 FUER REAL-GROSSEN, 1S14 FUER INTEGER-GROSSEN UND 1S44 FUER TEXTE. ES IST JEWEILS MIT (R).(I) ODER (A) GEKENNZEICHNET.

1. RESTART

```
(1) IRES
      IRES=0 ENTSPRICHT NORMALER RECHENLAUF
      IRES=1 ENTSPRICHT RESTART-LAUF
```

□

1

- 4 -

IOPT(1) IST FOLGENDEN VARIABLEN ZUGESORDNET:

IOPT(1) KONZENTRATIONSPROFILE IM
PARTIKEL, GRAPHITKORN
UND BE-GRAPHIT

IOPT(10) DIFFUSIONSKOEFFIZIENTEN FUER
BE-GRAPHIT

IOPT(11) DIFFUSIONSKOEFFIZIENTEN FUER
PARTIKEL

IOPT(12) DIFFUSIONSKOEFFIZIENTEN FUER
GRAPHITKORN

IOPT(13) FRACTIONAL-RELEASE FUER
PARTIKELKERN, PARTIKEL U.
BRENNNELEMENT, SOWIE ANTEIL AN
DEFEKTEN PARTIKELN

IOPT(14) INVENTAR IN PARTIKEL,
IN GRAPHITKORNERN,
IN GRAPHITPoren U. AUSSERHALB
DER BRENNNELEMENTEN

IOPT(15) INVENTAR IN PARTIKEL-KERN
UND PARTIKELBESCHICHTUNGEN

IOPT(16) FREIGESetzte SP-MENGE AUS
INTAKTEN U. DEFEKTEN PARTIKELN.
AUS GRAPHITK. UND AUS DEM
BRENNNELEMENT

IOPT(17) SP-FREISETZUNGSRATE AUS
INTAKTEN U. DEFEKTEN PARTIKELN.
AUS GRAPHITK. UND AUS DEM
BRENNNELEMENT

IOPT(18) ORTEN FUER RANDBEDINGUNG AN DER
BRENNNELEMENTOBERFLAECH
STOFFUEBERGANGSZAHL IN CM/SEC.
VERGLEICHFAKTOR U. KONZENTRAT.
IM KUEHLGAS IN U-MOL/CM**3)

- 5 -

- 3 -

(R) DTOUT(1) ISEC(1-N) (N KLEINER ODER GLEICH 5)
ZEITSCHRITTWEITEN ZWISCHEN TE(1-1) UND
TE(1) ZUM AUSDRUCKEN

0.456 E+8 900.0

BEMERKUNG: N IN DEN LETZTEN 3 EINGABEKARTEN WIRD AUTO-
MATISCH DURCH ABFRAGE VON TE(1) AUF NULL
BESTIMMT

1) IOPT(1)

I=1-20 AUSGABEOPTION FUER DIE ANSCHLIES-
SEND AUFGEFUEHRTEN VARIABLEN. (2KARTEN)
DIE LETZTE ZIFFER VON IOPT(1) GIBT AN, WO
DIE ERGEBNISSE+HUSGEGEBEN WERDEN SOLLEN

LETZTE ZIFFER VON IOPT(1):

- 0 KEINE AUSGABE
- 1 NORMALE AUSGABE AUF DRUCKER
- 2 ZUSATZLICHE AUSGABE DES LOGA-
RITHMUS AUF DRUCKER

DIE AUSGABE ERFOLGT SO, DASS DIE WERTE AN
HP-GRAPHIC-TERMINALS LEICHT MIT AUTO PLOT
GEZEICHNET WERDEN KOENNEN.

BEI VARIABLEN DIE NICHT UEBER DIE ZEIT AUF-
GETRAGEN WERDEN (Z.B. KONZENTRATIONSPRO-
FILE) GEBEN DIE ERSTEN DREI ZIFFERN AN MIT
WELCHER FREQUENZ AUSGEDRUCKT WERDEN SOLL.
DIE BETREFFENDE VARIABLE WIRD DANN JEWELNS
IN DEN ZEITABSTRAENDEN
T=1 IOPT(1)/101*DTOUT
AUSGEDRUCKT

- 4 -

- 6 -	
STUETZPUNKTE IN DEN EINZELNEN BE-ZONEN	
(I) NRB(I)	
I=1,NRBE	
9 20	
BEMERKUNG: DIE ZAHL DER BE-ZONEN WIRD AUTOMATISCH DURCH ABFRAGE VON RBE(I) AUF NULL BESTIMMT. DIE VORGEGBENE SPEICHERPLATZRESERVIERUNG. VERLANGT: SUMME NRB(I) + 1 .LE. 200	
(R) PZAHLO	ZAHL DER PARTIKEL IM Brennelement
20800.0	
4.4 PARTIKEL UND KORN	
(R) RCP(I) (CM)	(=1,NRP (NRP .LE.5) RADIIEN DER PARTIKELZONEN
200. E-4 277. E-4 385. E-4	
RKORN (CM) RADIUS DER GRAPHITKORNER	
S. E-4	
- 7 -	

- 5 -	
DIE WEITEREN IOPT(I) SIND NOCH FREI	
5	10 15
1	1 1 1
WENN ZWEITE ZIFFER VON IOPTPL .GE.1 WERDEN ALLE ERGEBNISSE AUF AUF MAGNETBAND GESCHRIEBEN	
(I) IOPTPL	
1	
4. GEOMETRIEDATEN	
4.1 Brennelement	
(R) RBE(I) (CM)	RADIIEN DER BE-ZONEN (MAX. 5-ZONEN) (MOMENTAN NUR VERSION FÜR 2-ZONEN)
2.5 3.0	
- 6 -	

- 8 -

6. TRANSPORTARTEN DER SP

6.1 'PORENDIFFUSION'

(R) DOK (CM**2/SEC) FREQUENZFAKTOR UND
AKG (J/MOL K) AKTIVIERUNGSENERGIE FUER DIFFUSIONS-
KOEFFIZIENTEN IM GRAPHIT

2.0 E-1 160. E+3

6.2 PARTIKEL- UND KORNDIFFUSION

(R) DOK (CM**2/SEC) FREQUENZFAKTOR UND
AKG (J/MOL K) AKTIVIERUNGSENERGIE FUER KORNDIFFUSIONSK.

1.9 E-2 300. E+3

(R) DOP(1) FREQUENZFAKTOREN FUER DIFFUSIONS. CP
ICM**2/SEC)

4.5 E-10 1.0 E-08 7.0 E-04

- 9 -

- 7 -

(1) NRC(1) I=1.NRP (NRP .LE.51)
STUETZPUNKTE IN DEN PARTIKELZONEN
(INNERE ZONE HAT INDEX 1)

50 50 50

(1) NKO STUETZPUNKTE IM GRAPHITKORN

S

BEMERKUNG: DIE ZAHL DER CP-ZONEN WIRD AUTOMATISCH DURCH
ABFRAGE DER RADIIEN AUF NULL BESTIMMT.
DIE ZONE MIT INDEX 1 IST DIE INNERSTE ZONE.

DIE VORGEGBENE SPEICHERPLATZRESERVIERUNG
VERLANGT:
S1=1+SUMME (NRC(1)) .LE. 200
S2=NKO+1 .LE. 200

5. KONTAMINATION

(R) UKONGK (U/UG) URANKONTAMINATION IN DEN GRAPHITKORNERN
UKONGP (U/UG) URANKONTAMINATION IN DEN GRAPHITPoren
UKONT(1) URANKONTAMINATION IN DEN PARTIKELBESCH.
1=2.ZONENZAHLE (U/UG)

1.0 E-9 1.0 E-4 1.0 E-4 1.0 E-4 1.0 E-4

- 8 -

- 10 -	
(R)	ANLIN,BNLIN. KOEFFIZIENTEN FUER NICHTLINEARE ADSORPTIONSISOTHERME
6.5	-16.86 -0.765 1.87
BEMERKUNG: AUS DEN OBIGEN KOEFFIZIENTEN WIRD DIREKT DER VERTEILUNGSKOEFFIZIENT AN DER GRENZE GRAPHIT-HELIUM (IN FUNCTION ADSORP) BESTIMMT. BEI CHAND.LE. GRENZ DURCH $ALPHA=DEXPIAL+BL*1.E3/T)/T$ BZW. BEI CHAND.GT. GRENZ DURCH $ALPHA=DEXPIAL+BN*1.E3/T)=C*(1+FN*1.E3/T)$ SIEHE JUEL 1791 SEITE 29 U.30 SIND DIE ADSORPTIONSISOTHERMEN IN ANDERER FORM GEBEN,MUESSEN DIE KOEFFIZIENTEN ENTSPRECHEND UMGERECHNET WERDEN	
7. NUKLEARE DATEN	
(R)	RINV (U-MOL) SP-INVENTAR IM BETREFFENDEN BRENNELEMENT ZUR ZEIT T=0
WENN RINV IN ANDERER DIMENSION EINGEGEBEN WIRD, MUSS DAS NATUERLICH AUCH IN DEN QUELLPROGRAMMEN QUELL,QUELLP U. QUPOR SOWIE BEI DEN ADSORPTIONSISOTHERMEN UND BEIM OUTPUT BERUECKSICHTIGT WERDEN. ZERFK (1/SEC) ZERFALLSKONSTANTE DES NUKLIDS. FUER DAS DIE FREISETZUNG GERECHNET WIRD	
1.0 E-5 7.29 E-10	

- 9 -	
(R)	AKP111 AKTIVIERUNGSENERGIE FUER DIFFUSIONSK. CP (J/MOL K)
78.0 E+3	0.0 273.0 E+3
BEMERKUNG: DER INDEX 1 IN DEN LETZTEN 4 KARTEN LAUEFT JEWUEILS VON 1 BIS ZONENZAH. INDEX 1 STEHT FUER INNERE ZONE	
6.3 RECOILREICHWEITEN	
(R)	RECKER (CM) RECOILREICHWEITE IM PARTIKELKERN
	RECPYC (CM) RECOILREICHWEITE IN PYC-SCHICHTEN
	RECGRG (CM) RECOILREICHWEITE IN DER REUSSEREN BE-ZONE
7.5 E-04 10.0 E-4 15.0 E-4	
6.4 ADSORPTIONSISOTHERMEN	
(R)	ALIN,BLIN KOEFFIZIENTEN FUER LINEARE ADSORPTIONSISOTHERME
	CORENZ KONZENTRATION, BEI DER ZWISCHEN LINEARER (U-MOL/CM**3) UND NICHTLINEARER ADSORPTIONSISOTHERMEN GEWECHSELT WIRD
	DATEN FUER CAESIUM (S. JUEL1791 S.54)
10.2	-26.0 0.0076
- 10 -	